이학석사학위논문

소나무 나이테중의 H-3과 C-14의 방사능농도분포

2002년 8월

부경대학교 대학원

물 리 학 과

지 함 청

이학석사학위논문

소나무 나이테중의 H-3과 C-14의 방사능농도분포

지도교수 도 시 홍

이 논문을 이학석사학위논문으로 제출함

2002년 8월

부경대학교 대학원

물 리 학 과

지 함 청

지함청의 이학석사 학위논문을 인준함

2002년 6월 11일

주 심 이학박사 강 갑 중 ㊞

위 원 이학박사 이 충 섭 ㊞

위 원 이학박사 도 시 홍 ㊞

목 차

I. 서 론

환경 중에 존재하는 삼중수소(^{3}H)와 탄소-14(^{14}C)는 우주선에 의해 자연적으로 생성되기도 하고 대기권 핵실험과 원자력발전소의 가동에 의해 인공적으로 생성되고 있다. 1960년대 후반에 대기권 핵실험이 중지된 후 환경 중에 존재하는 ^{3}H와 ^{14}C는 주로 원자력발전시설에 의한 것이라고 할 수 있다. 그러나 월성 원자력발전소의 경우 상업가동을 시작하기 전의 환경 중에 있는 ^{3}H의 방사능농도 자료가 부족하며, 특히 원자력법 관계 규정 신설에 따라 1999년도부터 ^{14}C의 영향을 고려하여 주민피폭선량을 평가하도록 되어 있으나 1998년 이전까지는 월성원전 주변 ^{14}C에 대한 환경방사능 분석 자료가 전무한 상태로서 월성 원전 가동에 의한 ^{3}H와 ^{14}C의 환경영향을 파악하기 위한 연구가 필요하게 되었다.

한편, 소나무의 생장특성은 봄부터 가을까지 생장을 통해 나이테를 형성하고 겨울에는 활동휴지기를 가진다[1]. 나이테는 춘재(earlywood)와 추재(latewood)로 나뉘며 춘재는 일반적으로 봄부터 생장이 가장 왕성한 5월말까지 형성되며 춘재의 가도관(tracheid)과 도관(vessel)은 형성된 후 몇 일이 지나면 죽고 물질 수송의 기능을 수행하는 반면에 추재는 여름부터 초가을까지 생장하며 추재의 세포는 2 3개월 동안 자라면서 세포벽을 두껍게 만들고는 죽는다[2]. 나무의 생장과정에 일어난 광합성작용과 같은 물질대사(metabolism)를 통해 외부의 탄소와 수소가 나무에 축적되며 이렇게 축적된 탄소와 수소는 외부와 동위원소 교환 반응을 하지 않는다. 이러한 요인으로 인해 소나무 나이테 중의 ^{3}H와 ^{14}C의 방사능농도는 과거 대

기 중의 방사성 준위를 모니터링(monitoring)하는 좋은 수단으로 이용할 수 있다.

본 연구에서는 CANDU형 중수로(Canadian Deuterium-Uranium Pressurized Heavy Water Reactor) 발전소인 월성 원자력발전소 인근의 소나무를 채취하여 소나무 나이테에 결합되어 있는 삼중수소(Organically Bound Tritium, OBT)와 ^{14}C의 농도를 측정하여 발전소 운영결과와 비교하여 그 특성과 관련 경향성을 분석하였으며, 또한 이를 이용한 환경방사능평가의 가능성을 조사하였다.

Ⅱ. ^{3}H와 ^{14}C의 특성과 거동

1. ^{3}H의 특성 및 생성

1.1. ^{3}H의 특성

삼중수소(tritium, ^{3}H, T)는 수소(H)의 방사성 동위원소로서 낮은 에너지의 β선을 방출한다. β선 방출하는 대부분의 방사성 핵종은 β 붕괴시 생성핵이 여기 에너지준위 (excited energy level)로 변환되므로 감마선을 동시에 방출한다. 그러나 생성핵이 기저 에너지준위 (ground energy level)로 변환되어 감마선을 방출하지 않는 β붕괴 방사성 핵종을 순β선 방출 핵종이라 한다. 삼중수소는 β붕괴를 하여 헬륨원자로 변환되는 순β선 방출 핵종이며 그 붕괴형식은 그림1과 같다. 방출되는 β선의 평균에너지 5.7 keV이며 최대 β선 에너지는 18.6 keV이고 반감기는 12.35년이다. 삼중수소는 방출하는 β선의 에너지가 낮으므로 공기 중에서 최대 투과거리 (maximum track length)는 5 mm이고 물 속에서는 6.0 ㎛이다. 삼중수소의 방사능을 표기하는 단위로는 Ci, dpm, TU(Tritium Unit), Bq 등이 주로 쓰이며, 여기서 1 TU는 10^{18}개의 H 원자 중에 1개의 ^{3}H 원자가 존재할 때의 방사능 표기 단위이다[3].

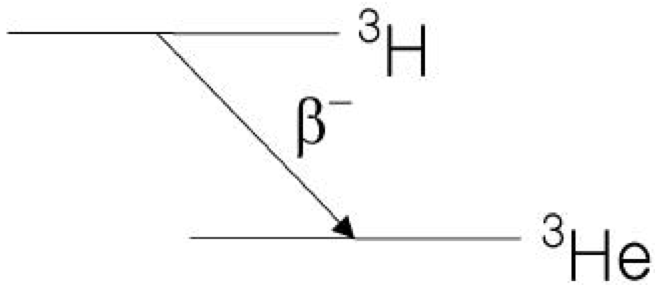

그림 1. 삼중수소의 붕괴형식

자연에 존재하는 삼중수소의 형태는 기체 상태의 HT (또는 $^1H^3H$), T_2 (또는 $^3H^3H$) 등과 물 상태의 HTO, T_2O 등, 메탄(methane) 형태의 CH_3T, $C_2H_2T_2$, CHT_3, CT_4 등이 있다. 그러나 대부분의 삼중수소는 산소와 반응하여 HTO 형태로 변환되어 자연계에서 이동한다. 생물체 내에 존재하는 삼중수소는 조직자유수 삼중수소 (Tissue Free Water Tritium, TFWT)와 조직결합삼중수소(Organically Bound Tritium, OBT)로 구분된다. TFWT는 HTO 형태로서 생물체 내에서 물(H_2O)과 동일하게 생물체 내를 자유롭게 빨리 이동한다. 그러나 생물체 내에 들어와 조직을 구성하고 있는 탄소나 질소, 산소 등과 결합된 삼중수소를 OBT라 한다. 이들 중 질소, 산소 등과 결합된 삼중수소는 동위원소 교환 작용에 의해 쉽게 치환이 되지만 탄소와 결합된 삼중수소는 물질대사 과정을 통해서만 결합 및 치환이 일어난다. 특히 식물체에서는 흡수 또는 광합성 작용을 통해 들어온 삼중수소(HTO)의 일부가 조직을 구성하는 탄소와 직접 결합하거나 질소, 산소 등과 결합되어 있던 수소와 교환되어 조직에 결합된다.

1.2. 삼중수소의 생성

삼중수소의 자연생성은 대기권에 존재하는 질소, 산소, 물 등과 우주선 중의 빠른 중성자와의 핵반응에 의한 것이다. 대기 중의 삼중수소 생성식은 다음과 같다.

$$^{14}N + {}^{1}n = {}^{3}H + {}^{12}C$$

$$^{16}O + {}^{1}n = {}^{3}H + {}^{14}O$$

$$^{2}H + {}^{1}n = {}^{3}H + \gamma$$

이와 같은 반응으로 성층권이나 대류권에서 생성된 삼중수소는 산화나 교환반응을 통해 HTO나 T_2O의 형태의 비나 눈 등으로서 지표면에 떨어진다.

삼중수소의 인공생성은 대기권 핵폭발실험 및 원자력 발전과 핵연료 재처리과정, 핵융합 등에 의해 생성된다. 대기권 핵폭발실험에서는 핵분열 반응시 생성되는 중성자가 질소와 산소와 핵반응을 일으켜 삼중수소를 생성하며 1952년 수소폭탄 실험 이후 대기권에서의 삼중 수소량이 비약적으로 증가하였다.

원자력 발전에서의 삼중수소는 주로 핵분열 반응시 생성된 중성자와 감속재와의 충돌반응과 ternary fission 등에 의해 생기며 원자로의 형태에 따른 년간 MW당 삼중수소 생성량을 표 1에 나타내었다. 중수형 원자로 (HWR)에서는 천연우라늄을 핵연료로 사용하고 감속재는 중수(^2H_2O)를 사용하므로 생성되는 삼중수소의 양은 표 1에서와 같이 다른 형태의 원자로에 비해 5배 이상 큰 것으로 알려져 있다.

표 1 .원자로의 형태에 따른 삼중수소 생성량

원자로 형태	^{3}H-생성량 (Ci/MW/y)
BWR (Boiling-Water Reactor)	20
PWR (Pressurized-Water Reactor)	19
HWR (Heavy-Water Reactor)	172
MAGNOX (MAGNOX Reactor)	26
AGR (Advanced Gas-cooled Reactor)	18
HTR (High-Temperature Reactor)	15
FBR (sodium-cooled Fast Breeder Reactor)	32

2. 방사성탄소(^{14}C)의 물리적 특성

원자번호가 6인 C에는 질량수가 각각 10, 11, 12, 13, 14, 15인 6개의 동위원소가 있다. 이중 ^{12}C와 ^{13}C는 안정동위원소로 자연존재 비율이 각각 98.892 %, 1.108 %이다. 그리고 ^{10}C, ^{11}C, ^{15}C는 반감기가 각각 19.1 s, 20.42 m, 2.4 s인 방사성동위원소이다[4)].

^{14}C는 1930년대에 핵반응을 통하여 존재의 가능성이 추측되었으며, 1936 1938년에 M. D. Kamen이 $^{14}N(n,p)^{14}C$ 핵반응연구를 통해 ^{14}C의 존재를 확인하였다[5)-8)]. ^{14}C는 ^{14}N으로 붕괴할 때 최대에너지가 0.156 MeV (평균에너지 0.045 MeV)인 β입자를 방출하며, 반감기는 5730년이다[9)].

2.1. ^{14}C의 자연생성

자연에서 생성되는 ^{14}C는 ^{14}N이 성층권에서 우주선과 상호 작용하여 중성자를 포획함으로서 생성될 수 있는데 그 대표적인 핵반응은 다음과 같다.

$$^{14}N + n \rightarrow {}^{14}C + {}^{1}H$$

우주선에 의한 ^{14}C 생성율은 우주선의 흐름과 에너지의 변화에 관계된다. 우주선에 의한 2차 중성자와 ^{14}C의 자연 생성율은 고도에 따라 증가하고 120 - 75 mbar 사이의 압력고도에서 최대가 된다. 우주선과 대기층 사이에 일어나는 핵반응은 주로 $^{14}N(n,p)^{14}C$이며, 이 외에도 $^{14}N(n,{}^{3}H)^{12}C$와 $^{16}O(n,\gamma)^{17}O$ 등이 있으며 반응율은 각각 1 %와 1 ‰이므로 ^{14}C의 생성량은 거의 우주선 중성자의 총량과 같다. 지구표면 근처에서의 평균 중성자 생성율은 2.2 neutrons/cm^2・s이며[4)], 지구의 총 표면적이 5.1×10^{18} cm^{2}이므로 ^{14}C의 생성율은 11.2×10^{18} 개/s이다. 또한 ^{14}C의 붕괴율은 1.6×10^{11} 회/g・s이며, ^{14}C의 생성과 붕괴가 평형을 이루었을 때 지구상 의 ^{14}C총량은 약 70 t(약 300 MCi)[10-11)]이다. 생성된 ^{14}C는 원자상태로 존재하는 시간이 길지 못하며 짧은 시간 내에 $^{14}CO_2$로 산화된다. $^{14}CO_2$는 $^{12}CO_2$와 화학적 성질이 같으며 생성 후 빠른 시간 내에 대기 CO_2에 혼합되어 자연계 탄소의 순환활동에 참여한다.

2.2. 인공생성

^{14}C의 인공생성은 두 가지로 분류할 수 있다. 하나는 1950 - 1960년대 사이 대기권 핵실험에 의해 생성된 ^{14}C이다. 대기권 핵실험에 의해 대기 이산화탄소 중 ^{14}C의 농도가 대폭적으로 증가하였는데 이것을 원자폭탄효과(Atom Bomb Effect)[12)]라 한다. 또 하나의 생성원인은 원자력발전소가동에 의한 ^{14}C의 방출이다. ^{14}C 생성율은 각 원자로 형별로 살펴보면 가압 중수로가 경수로에 비해 약 30배가 넘는 것으로 보고되고 있다. 특히 중수형 원자로에서 환형 기체로 질소가스를 사용하고 적절한 제거설비가 없는 경우 생성량의 최대 50 % 정도는 굴뚝을 통해 대기 중으로 방출되는 것으로 추정하고 있다. 초기 CANDU형 중수로(Canadian Deuterium-Uranium Pressurized Heavy Water Reactor)는 환형 기체로 질소를 사용하였으나 1970년대에 대부분 이산화탄소로 대체되었다. 표1과 같이 환형 기체와 원자로 구조물에 함유된 미량의 질소, 감속재인 중수 중에 함유된 ^{17}O의 중성자 방사화에 의해 상당량의 ^{14}C 이 생성되고 있다.

표 2는 CANDU-600형 원자로의 계통별 ^{14}C 생성, 제거 및 방출율을 보여주고 있다.

표 2. 각종 원자로에서의 ^{14}C 생성율

reactor	^{14}C production rates (Ci/GW・yr)			
	coolant	other systems		fuel
CANDU6 (600 MWe)	10	moderator D_2O CO_2 annulus system	730 -	26
CANDU (750 MWe)	13	moderator D_2O - with CO_2 annulus system - with N_2 annulus system	547 0.7 650	17
BWR	4.7	cladding & structural materials	43.3-60.4	17.6
LWR	5.0	cladding & structural materials	30.5-41.6	18.8
LMFBR	0	cladding & structural materials	12.8	6.3
HTGR	0	cladding & structural materials	< 190	12

표 3. CANDU-600형(600 MW)의 계통별

^{14}C 생성, 제거 및 방출율

발생원	생성율(%)	방출율(%)	제거율(%)
환형 기체	0.13	0.13	0.00
감속재	95.20	3.77	91.43
1차열전달	1.30	0.00	1.30
핵연료	3.37	0.00	0.00

3. ^{14}C의 대기순환

^{14}C는 고공 대기 중에서 주로 생성되며 ^{14}C의 자연생성의 유일한 근원이다. 생성된 ^{14}C는 원자형태로 존재하는 시간이 굉장히 짧으며 자체의 운동에너지 때문에 짧은 시간 내에 $^{14}CO_2$로 산화된다. $^{14}CO_2$는 $^{12}CO_2$와 화학성질이 완전히 동일하며 $^{14}CO_2$로 산화된 후 짧은 시간 내에 대기 CO_2속에 혼합되어 자연계 탄소의 순환 및 교환에 참여한다.

대기상층대류권에서 CO_2는 아주 빨리 혼합되며 등온층과 대류층 사이에서도 수직혼합운동이 일어난다. 남반구와 북반구의 기류혼합은 아주 신속하며 북반구 대기핵실험에서 생성된 ^{14}C는 얼마 지나지 않아 남반구에서 검출될 수 있으며 1 - 2년 후 균일하게 혼합된다[13). 식물은 광합성작용을 통하여 대기중의 CO_2를 섭취하는데 생물계에서의 탄소체류시간은 약 10 - 20년으로 추정된다[14). 그림 2는 ^{14}C의 생물권 순환도 이다[15). 식물은 광합성작용을 통하여 대기 중의 CO_2를 흡수하고 흡수된 탄소는 생물조직을 구성하며 동물은 식물을 섭취하여 생존하기 때문에 동식물조직은 직접 혹은 간접적으로 대기 중의 CO_2를 섭취하여 ^{14}C를 포함하고 있다. 동물의 배설물, 동식물의 유해는 표층 토양 중에 묻히므로 토양도 ^{14}C를 함유하고 있으며 동물호흡, 식물체유해의 분해는 대기 중으로 다시 $^{14}CO_2$를 방출한다.

지구 표면은 대부분 해양으로 덮여있으며 해수 중에는 대량의 CO_3^-, HCO_3^-과 같은 무기탄소 원자를 함유하고 있다. 대기와 해양 표면이 접촉하면서 대기 CO_2가 대량으로 해양중의 탄소물질과 교환반응을 일으켜 해수 중에 ^{14}C가 침투된다. 대기 생물계, 해양은 대량

의 탄소를 함유하고 있으며 상호 교환, 순환한다.

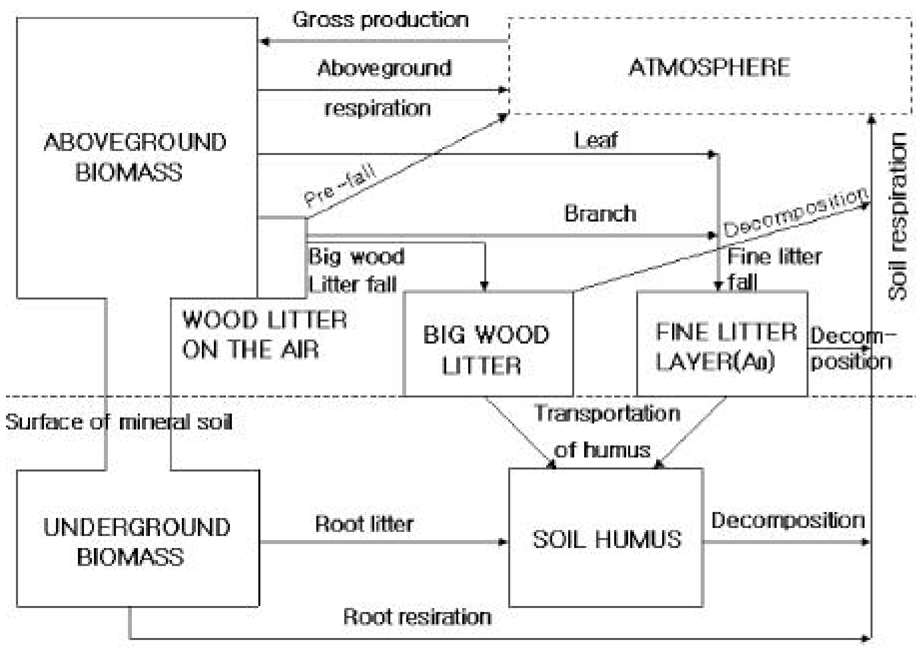

그림 2. 탄소의 대기순환도

III. 실 험

1. 시료채취

월성원전 1호기에서 남서(SW) 방향 850 m 지점(동경 129° 28′ 10″, 북위 35° 42′ 20″)의 소나무를 1 m 간격으로 3등분 절단하여 채취하였다. 채취한 소나무는 나이테를 구분하여 시료를 채취할 수 있도록 1 cm 두께로 수평면으로 절단하고, 나이테별로 시료를 분리하여 동일한 해에 성장한 나이테의 일정량 이상의 시료를 얻었다. 사진 1은 채취한 소나무를 수평면으로 절단한 모습이다.

사진 1. 채취한 소나무 시료 나이테 절단면

사진 2. 채취한 소나무 시료의 나이테

사진 3. 소나무 시료를 연도별로 나이테를 분리하는 모습

사진 4. 소나무 나이테 시료 중 불필요한 옹이를 제거하는 모습

2. α-cellulose 추출

채취한 소나무의 나이테는 아염소산 나트륨 (sodium chlorite, $NaClO_2$) 용액에 넣고 60 ℃로 가열하여 나이테를 부드럽게 만든 후 바깥쪽 나이테로부터 안쪽으로 21년에 해당하는 나이테를 나이테별로 약 300 g씩 잘라 내었다. 잘라낸 나이테는 약 0.5 mm 크기로 분쇄한 후 에탄올 2 L에 이틀동안 담아 두어 소나무 나이테 속의 송진을 제거하였다. 다음으로 증류수 2 L에 아 염소산 나트륨 120 g과 초산(acetic acid) 5 ml를 첨가한 용액에 나이테를 옮겨 담은 후

6시간 동안 끓였다. 아염소산 나트륨 용액에 넣어 끓이는 과정을 4회 이상 반복하여 소나무 나이테 속의 목질소(lignin) 등을 완전히 제거하였다. 17.5 % 수산화나트륨 (NaOH) 용액에서 1시간 동안 끓여 cellulose 이외의 불순물을 제거한 후 증류수로 씻어서 pH가 중성이 되도록 하였다. 이렇게 얻어낸 흰색 침전물을 건조하여 순수한 cellulose를 회수하였다[16]. 이러한 화학전처리 과정을 통해 얻어낸 순수한 cellulose의 회수율은 19 26 %이었다.

사진 5. α-cellulose의 확대도(100배)

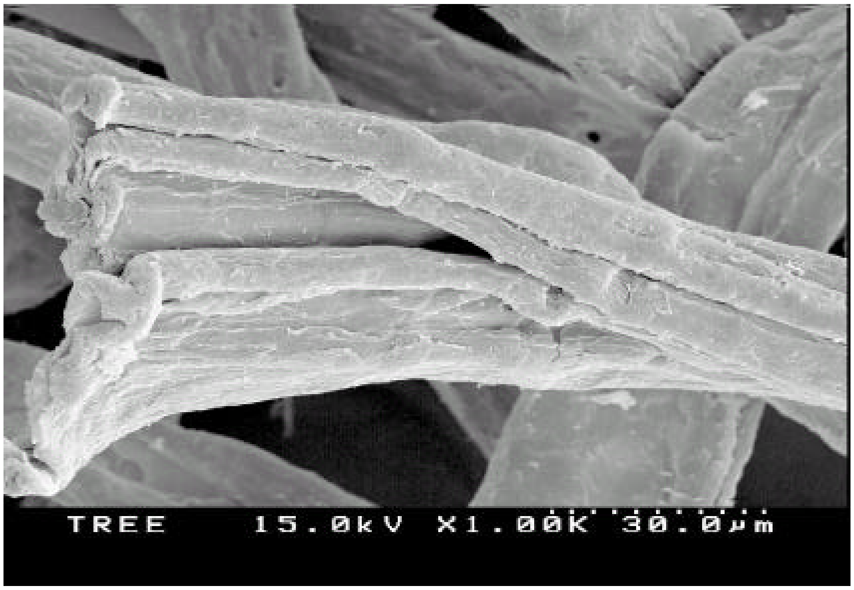

사진 6. α-cellulose의 확대도(1000배)

3. ^{3}H와 ^{14}C의 전처리

3.1. ^{3}H의 전처리

소나무 나이테 중의 OBT 방사능 농도를 측정하기 위하여 건조한 α-cellulose를 동결건조기(본디로 FD5508, 일신)로 잔여 수분을 완전히 제거한 후 그림 7과 같은 고압연소기(Parr 1121, Parr Instrument Co.)로 300 psi의 산소분위기에서 연소하여 OBT를 물 형태로 포집하였다. 포집한 수분으로부터 얻은 α-cellulose의 수분 함유율은 0.36 0.44 L/kg-dry이었다. 포집한 결합수에 탈염처리 및

유기물 제거를 위하여 $KMnO_4$와 Na_2O_2를 적당량 첨가한 후 증류하여 얻은 3 cc의 증류액을 20 cc 용량의 테프론 바이알(teflon-coated plastic vial)에 담아 17 cc의 액체섬광체(HiSafe 3, PerkinElmer, Inc.)와 혼합하여 계측용 시료를 제조하였다.

3.2. ^{14}C의 전처리

^{14}C 전처리 장치는 CO_2 1차 포집장치, CO_2 2차 포집장치로 구성하였다. CO_2 1차 포집장치는 고압연소장치(Parr, Model 1121), 점화장치, CO_2 1및 2차 포집병으로 구성되었으며 구성도는 그림 3과 같다. 고압연소장치는 부피가 5.5 L이며 최대 허용압력이 3000 psi이다. 고압연소장치에 주입하는 연소기체는 순도가 99.9 %의 산소를 사용하였으며 CO_2 포집 용액으로는 물과 혼합비가 1 : 1인 특급 NH_4OH 용액을 사용하였다. 고압연소장치에 사용할 수 있는 시료는 유기물의 함량이 10 % 이상인 생체시료와 토양시료이며, 시료는 냉동 건조 후 압착하여 직경 10 mm의 펠렛(pellet) 형태로 만들어 사용하였다. 고압연소장치의 내부 구조도는 그림 5와 같다. CO_2 2차 포집장치는 그림 4와 같이 유량계, 둥근 플라스크, 분액깔때기, 냉각기, 수분흡수장치, hot plate 및 CO_2 흡수 바이알로 구성하였으며 본 실험에는 CO_2의 생성(탄산칼슘+질산)에 특급 질산을 사용하였다.

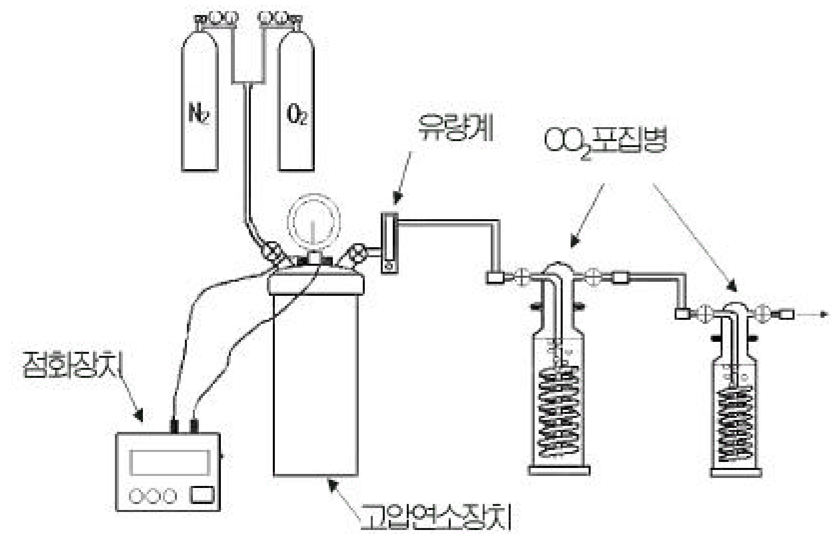

그림 7. **고압연소 및** CO_2 1**차 포집장치의 구성도**

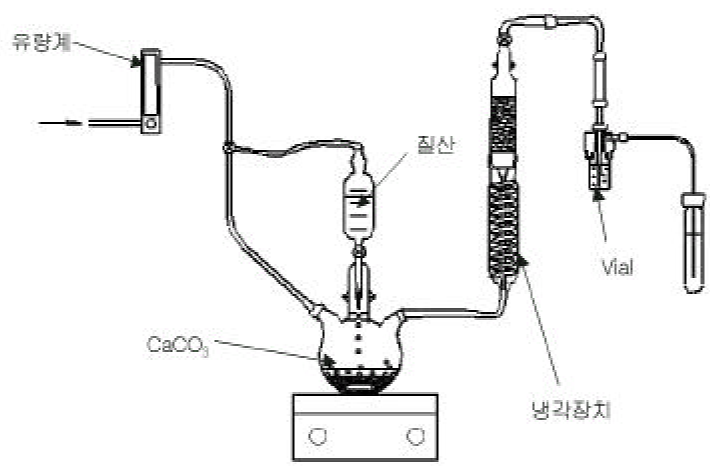

그림 8. CO_2 2**차 포집장치 구성도**

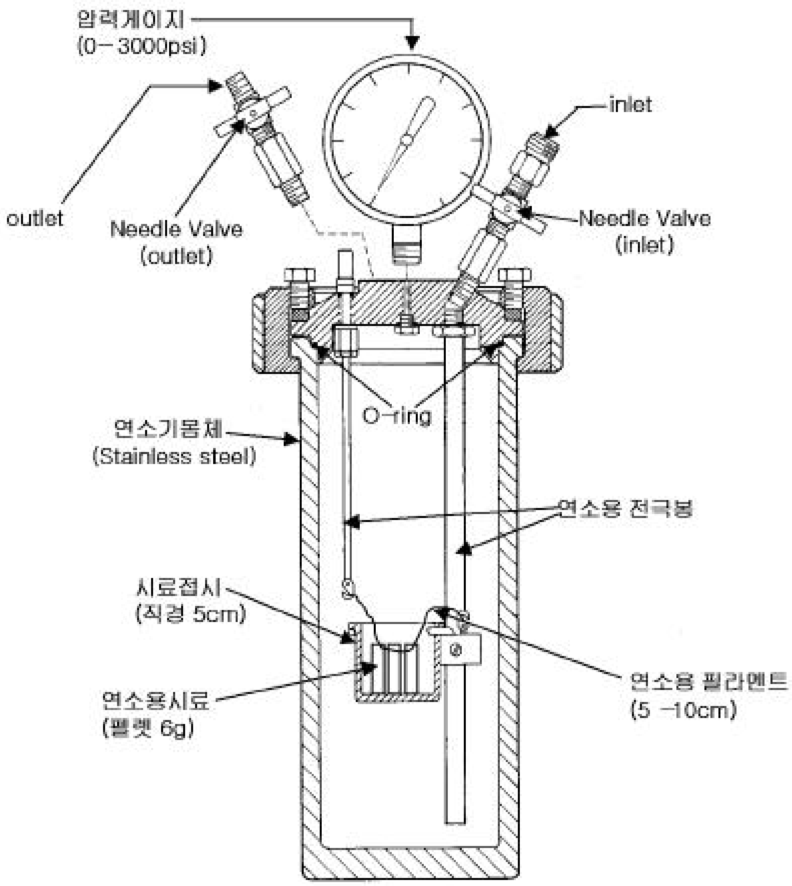

그림 9. 고압연소장치 내부구조도

4. 액체섬광계수기를 이용한 ^{3}H와 ^{14}C의 방사능 측정

4.1. 액체섬광계수기의 원리

유기 섬광체 (organic scintillator)의 섬광과정(scintillation mechanism)은 단일 분자의 에너지 준위 사이의 전이(transition)에 의해서 생긴다. 이것은 분자의 종류 (molecular species)에 따라 결정되기 때문에 그 물리적인 형태와는 무관하며, 유기 섬광체의 섬광과정은 그림 10과 같다.

섬광체에 에너지가 흡수되면 기저상태(ground electronic state)의 분자는 들뜸 상태(excited electronic state)로 여기되며(excited) 그림 10에 나타낸 바와 같이 내부전환(internal conversion), 섬광방출(fluorescence), 계간교차(intersystem crossing), 인광방출(phosphorescence) 과정들을 거쳐 기저상태로 돌아온다. 내부전환은 여기상태의 분자가 섬광방출을 동반하지 않고 최저 여기상태나 기저상태로 전자천이가 일어나는 현상이다. T_1에서 기저상태로 전자천이가 일어날 때 방출되는 인광은 T_1상태(Triplet State)가 S_1상태(Singlet State)보다 에너지 준위가 낮기 때문에 섬광에 비해 더 긴 파장의 빛을 방출하고 전자천이 시간이 더 길다. 따라서 액체섬광측정에서는 이상의 과정들 중에 전자천이 즉시 일어나는 섬광(prompt fluorescence)만을 신호로 취해 계측에 이용한다[17). 본 실험에서는 삼중수소의 방사능 계측을 위해 PerkinElmer사에서 제작된 액체 섬광체인 HiSafe 3를 이용하였다.

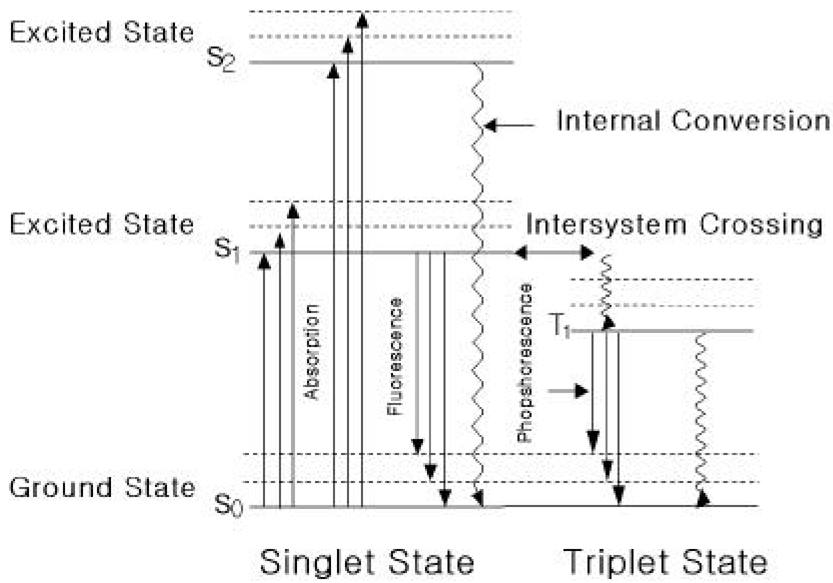

그림 10. 유기섬광체의 섬광과정

본 실험에서는 ^{3}H와 ^{14}C의 방사능농도 측정을 위하여 0.5 cpm까지 계측이 가능한 극저준위 액체섬광계수기(ultra low level liquid scintillation counter)인 Quantulus 1220 (PerkinElmer, Inc.)을 사용하였으며, 그 장치의 개략도는 그림 11과 같다. 장치는 우주선과 외부로부터 유입될 수 있는 감마선에 의한 영향 등을 줄이기 위해 납을 주성분으로 한 수동 차폐체 (passive shield)와 광물유(mineral oil) 및 섬광체를 섞은 능동 차폐체 (active shield)를 이용하여 이중으로 차폐되어 있다. 수동 차폐체는 시료가 측정되는 위치 윗부분의 두께가 20 cm이며 전체무게가 630 kg에 달하는 비대칭형태로 구성되어 있고, 능동 차폐체는 주계수기(beta detector)를 원통형으로 감싸고 있어서 외부로부터의 우주선 등의 입사시 주계수기 주위의 차

폐체 외부에 설치되어 있는 가드계수기(guard detector)와 주계수기에 의해 동시 계측되고 이 때 가드계수기로부터의 신호를 주계수기 신호의 ADC(Analogue to Digital Convertor)에 inhibit 신호로 주어 주계수기의 신호로부터 감하게 만들어 기저(background) 계수를 줄일 수 있도록 하였다.

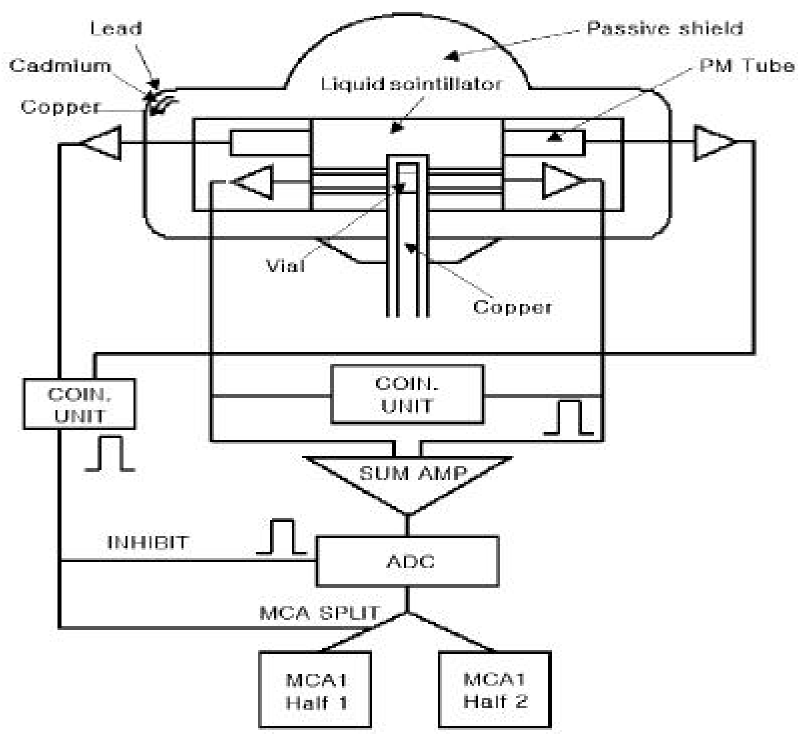

그림 11. 섬광검출기의 개략도

4.2. ^{3}H의 방사능 측정

제조한 시료는 화학 형광 (chemiluminescence)에 의한 유사 계수 (similar counting)를 줄이기 위해 극저준위 액체섬광계수기 (Quantulus 1220, PerkinElmer, Inc.) 안에 넣고 24시간 방치한 후 기저(background) 시료와 표준(standard) 시료와 함께 각각 30분, 60분, 10분씩 10회 반복하여 300분, 600분, 100분간 계측하였다. 동일한 측정시간이라면 장시간 1회 측정하는 것보다는 여러 회 반복 측정이 바람직하며, 측정치 중에서 이상치는 제외한다.

4.3. ^{14}C의 방사능 측정

포집하여 얻은 시료는 기저 시료와 함께 극저준위 액체섬광계수기로 각각 30분, 60분씩 20회 반복하여 계측하여 각 계측치들에서 2.25σ를 벗어나는 계측치는 제외하였다.

5. 방사능 농도의 분석

5.1. kσ검정법

일련의 측정치 N_1, N_2, N_3, $\cdots N_i$ 가 정규분포를 가질 때 $k\sigma$ 검정법에서 k는 다음과 같이 정의된다.

$$k = \frac{x - \mu}{\sigma} \qquad (1)$$

여기서 x는 정규분포함수의 변수치, μ는 평균치, σ는 표준편차이다. 이 때 i회 측정한 결과치에 대한 평균값이 $\overline{n}$이면 표준편차 σ는

$$\sigma = \sqrt{\frac{(\overline{n} - N_1)^2 + (\overline{n} - N_2)^2 + \cdots\cdots + (\overline{n} - N_i)^2}{i}} \qquad (2)$$

으로 주어지며 $\overline{n} - k\sigma < N_i < \overline{n} + k\sigma$의 범위를 벗어나는 측정치는 이상치로 간주하여 제외시킨다. k값에 따른 측정치의 신뢰도는 표 4에서와 같이 주어지며 본 실험에서 k는 1.64로 정하여 측정치가 1.64 σ 내에 있을 확률 즉, 측정치의 신뢰도는 90 %이었다[18].

표 5. $k\sigma$검정법에서의 k값에 따른 측정치의 신뢰도

k	1.00	1.64	1.96	2.00	3.00
신뢰도	68.30 %	90.00 %	95.00 %	95.40 %	99.74 %

5.2. 방사능 농도 계산

미지(unknown) 시료에 대한 방사능농도를 측정하기 위하여 미지 시료와 기저 시료를 각각 t분씩 m회 측정하고, 미지 시료 측정치 중 이상치가 k개, 기저 시료 이상치가 j개일 경우 이상치를 제외한 각각의 측정치는

측정 시료의 측정치 : $n_{s1},\ n_{s2},\ n_{s3}\ \cdots\cdots\ n_{s(m-k)}$ (3)

기저 시료의 측정치 : $n_{b1},\ n_{b2},\ n_{b3}\ \cdots\cdots\ n_{b(m-j)}$ (4)

으로 주어진다. 이 때 미지 시료와 기저 시료의 계수율 a [cpm]와 b [cpm]는

$$a = \frac{n_{s1} + n_{s2} + n_{s3} + n_{s4} + \cdots\cdots + n_{s(m-k)}}{t(m-k)} \tag{5}$$

$$b = \frac{n_{b1} + n_{b2} + n_{b3} + n_{b4} + \cdots\cdots + n_{b(m-j)}}{t(m-j)} \tag{6}$$

이며, 미지 시료의 순계수율 c [cpm]는

$$c = (a - b) \pm \sigma_c \tag{7}$$

이다. 여기서 σ_c는 순계수율의 표준편차는

$$\sigma_c = \sqrt{\frac{a}{t(m-k)} + \frac{b}{t(m-j)}} \tag{8}$$

로 나타내어진다. 따라서 미지 시료의 ^{14}C와 미지 물시료, TFWT시료 또는 OBT시료의 ^{3}H의 방사능 농도 A [Bq/gC]와 A [Bq/L], A [Bq/kg-fresh]는

$$A = \frac{c}{\eta \times V \times 60} \quad [Bq/gC] \qquad (9)$$

$$A = \frac{c}{\eta \times V \times 60} \quad [Bq/L]$$

$$A = \frac{c \times \rho \times \delta}{\eta \times V \times 60} \quad [Bq/kg-fresh]$$

$$A = \frac{c \times \rho \times \varkappa \times \mu}{\eta \times V \times 60} \quad [Bq/kg-fresh]$$

이며, 여기서 η는 계측효율, V는 시료량 [g] 또는 시료량 [L], ρ는 비중, δ는 자유수 함유율 [L/kg-fresh], $\varkappa$는 건분율 [kg-dry/kg-fresh], μ는 결합수 함유율 [L/kg-dry]이다. 그리고 최소검출방사능(Minimum Detectable Activity) MDA [Bq/L] 또는 MDA [Bq/gC]는

$$MDA = \frac{k}{\eta \cdot V}\sqrt{(R_0/t_s)(1+t_s/t_0)}\, e^{\lambda \cdot \Delta t} \qquad (10)$$

로 주어지며, 여기서 R_0는 백그라운드시료의 계수율 [cps], t_0는 기저 시료의 총 계측시간 [s], t_s는 미지시료의 총 계측시간 [s], Δt는 시료채취부터 계측까지의 경과시간 [s]이다.

IV. 결과 및 고찰

1. 나이테중의 ^3H 방사능농도

소나무 나이테중의 ^3H 방사능 농도는 나이테로부터 추출한 α-cellulose ($(C_6H_{10}O_5)_n$)를 구성하는 탄소에 결합되어 있던 수소의 동위원소인 OBT의 방사능 농도이며, 측정결과를 표 6에 나타내었다. 그림 12에서 볼 수 있듯이 나이테 중의 OBT 방사능농도는 월성원전 상업가동 시작 시점인 1983년도 이전에는 연평균 42.1 Bq/L로 나타났으며 상업가동 시작 후 서서히 증가하다가 1989년에 급격히 증가하여 1997년도에는 393.4 Bq/L까지 증가였다가 감소하여 261.2 Bq/L까지 낮아지는 경향으로 나타났다.

표 6. 나이테중의 OBT와 C-14의 방사능농도

연도	OBT 방사능농도 (Bq/L)	C-14방사능농도 (Bq/gC)	연도	OBT 방사능농도 (Bq/L)	C-14방사능농도 (Bq/gC)
2000	261.2±5.6	0.576±0.008	1989	198.4±6.1	0.441±0.007
1999	274.8±5.9	0.650±0.008	1988	114.6±5.0	0.353±0.006
1998	310.7±6.4	0.596±0.008	1987	76.7±4.8	0.334±0.006
1997	388.4±6.9	0.641±0.008	1986	66.8±4.6	0.320±0.006
1996	393.4±7.6	0.673±0.009	1985	76.5±4.9	0.331±0.006
1995	361.1±7.5	0.633±0.008	1984	51.1±4.7	0.314±0.006
1994	349.8±7.6	0.628±0.008	1983	34.9±4.6	0.295±0.008
1993	320.0±7.6	0.604±0.008	1982	45.8±5.0	0.297±0.006
1992	264.1±7.2	0.552±0.008	1981	43.5±5.2	0.297±0.006
1991	264.0±7.1	0.519±0.007	1980	37.1±5.4	0.297±0.006
1990	222.4±5.6	0.468±0.007			

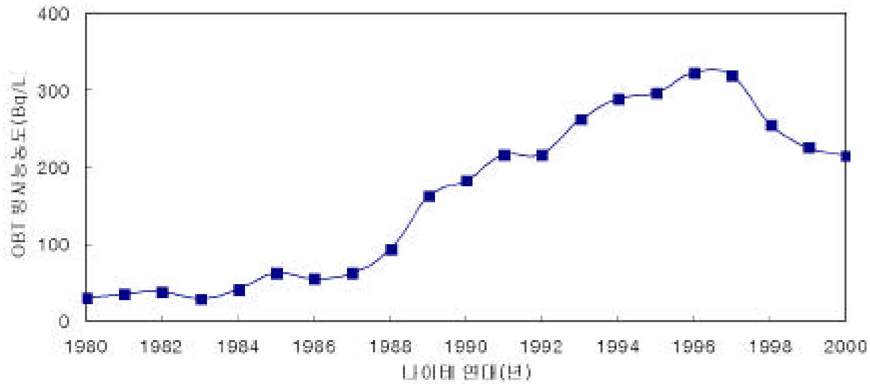

그림 12. **나이테중의** OBT**방사능농도의 연도별 변화**

2. 나이테중의 ^{3}H 방사능농도와 ^{3}H 방출량 사이의 상관관계

본 실험에서는 나이테 중의 ^{3}H **방사능농도와 월성원전 의** ^{3}H **방출량 사이의 상관관계를 조사하였으며, 그 결과를 그림** 13**에 나타내었다. 그림으로부터 알 수 있듯이 표본상관계수** R**은** 0.77**로서 그다지 높은 값을 나타내지 않았다. 이것은** ^{3}H **방출량 외에도 다른 인자들이 나이테중의** ^{3}H **방사능농도에 영향을 끼친다는 것을 뜻한다.**

^{3}H**는** stack**에서 대부분** HTO**의 형태로 대기 중에 방출되며,** washing-out **과정을 거쳐서 토양에 흡수된 후, 뿌리흡수를 통하여 소나무에 직접 흡수되거나, 기공을 통한 동위체교환반응에 의해 흡수되는데 이를 분류하면 아래와 같다. 소나무 나이테 속의 조직자유수** ^{3}H**는 잎새기공을 통한 흡수, 잎표면에서의 동위체교환반응, 뿌리를 통한 수분흡수 등에 의해 존재하며, 조직결합형** ^{3}H**는 대부분 광**

합성작용과 같은 물질대사과정에 의해 생성된다. 물질대사에 참여하는 수분은 조직자유수다. 주로 ^{3}H 방출량이 나이테중의 ^{3}H 방사능농도에 영향을 끼치지만 기상조건(풍향빈도, 강우량 등)도 많은 영향을 준다.

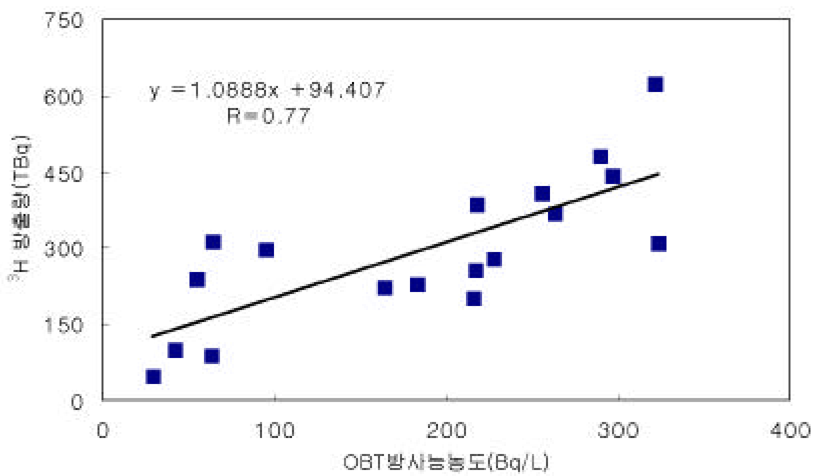

그림 13. ^{3}H 방출량과 OBT 방사능농도의 상관관계

그림 14에서는 나이테 중의 ^{3}H 방사능농도와 월성원전의 ^{3}H 방출량 사이의 시간별(연간) 변화도를 나타내었다. 그림으로부터 알 수 있듯이 ^{3}H 방사능농도와 ^{3}H 방출량은 전체적인 변화경향이 비슷하지만 국부적으로는 차이점을 드러냈다. 그림 14에서 볼 수 있듯이 1995, 1996년에는 ^{3}H의 방출량이 감소되었음에도 불구하고 ^{3}H 방사능농도는 증가하는 경향을 나타내었다. 그림 15로부터 알 수 있듯이 1995, 1996년의 강우량은 매우 적었다. 그러나 반면에 1995, 1996년 2년간 NE방향의 풍향빈도는 평균 6.35 %로서 평균 1% 대(1995년

이전)의 풍향빈도보다 훨씬 높았다(그림16). 즉 적은 방출량과 적은 강우량에 비해 높은 풍향빈도에 의하여 나이테중의 ^{3}H 방사능농도가 증가되었다고 판단된다. 1986-1988년 3년간 ^{3}H 방출량은 높지만 ^{3}H 방사능농도는 낮은 경향을 나타냈는데 그 이유는 다음과 같다고 판단된다. 1986년부터 1988년까지 3년간 연평균 강우량은 1072 mm로 21년 연평균 강우량 1271 mm보다 조금 적었다. 즉 높은 방출량, 평균 강우량에도 불구하고 ^{3}H 방사능농도는 낮게 나타난 것은 3년간 NE방향의 풍향빈도가 매우 낮았기 때문이라 추리된다.

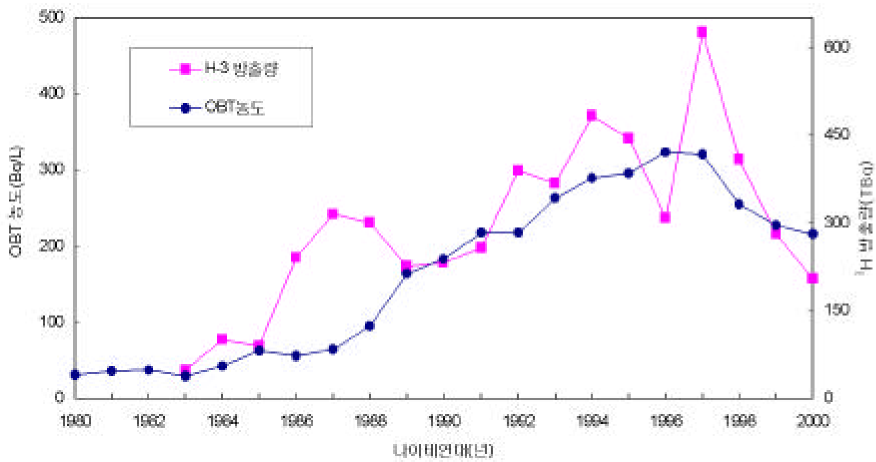

그림 14. ^{3}H 방출량과 OBT 방사능농도의 변화경향변화도

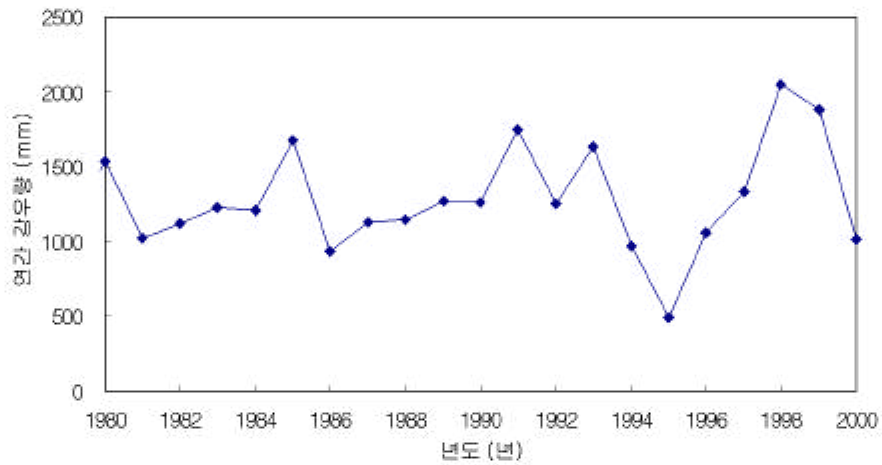

그림 15. 연간 강우량

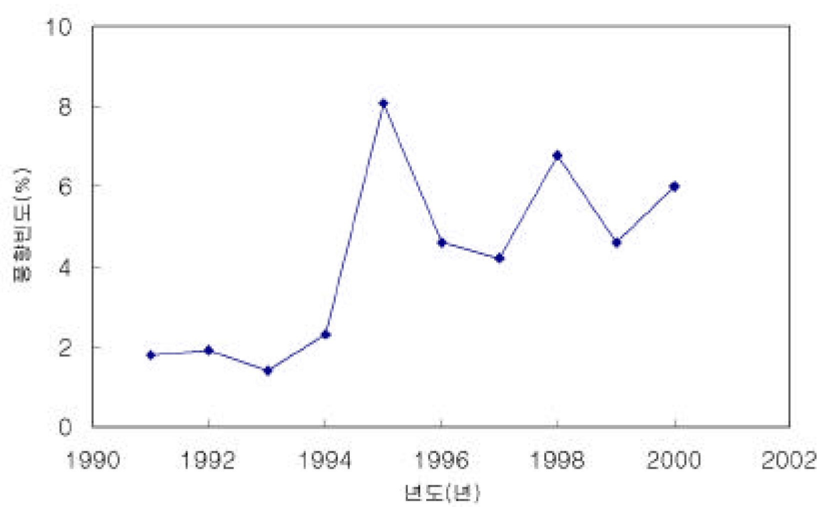

그림 16. 연도별 풍향빈도

3. 나이테중의 ${}^{14}C$ 방사능농도

나이테중의 ${}^{14}C$의 방사능농도 측정결과는 표 6에 OBT 방사능농도와 함께 나타내었으며, 그림 17에서와 같이 1981년도에 0.297 Bq/gC로 측정되었으며 이 값은 삼중수소와 마찬가지로 서서히 증가하다가 1989년에 급격히 증가하여 1997년에는 0.678 Bq/gC까지 증가하였다가 감소하여 0.576 Bq/gC까지 낮아지는 경향성을 보였다. ${}^{14}C$는 stack에서 주로 ${}^{14}CO_2$의 형태로 방출되므로 풍향빈도가 나이테중의 ${}^{14}C$ 방사능농도에 영향을 끼친다. 1998년 이전의 ${}^{14}C$ 방출량 통계자료는 알려져 있지 않으나, 그림 17에서 보여주는 바와 같이 1998년부터 2000년까지 나이테중의 ${}^{14}C$ 방사능농도와 실제 방출량과 관계변화경향은 유사한 것으로 판명되었다.

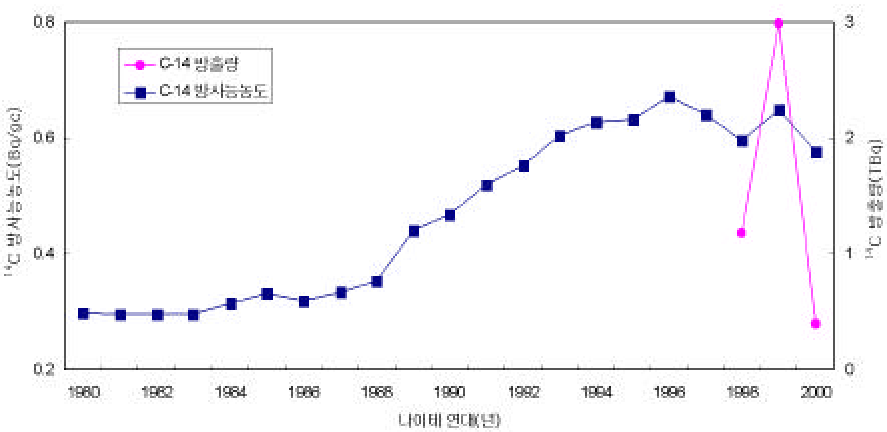

그림 17. 나이테중의 ${}^{14}C$ 방사능농도 연도별 변화

4. 나이테 중의 ^{3}H와 ^{14}C방사능농도사이의 상관관계

본 실험에서는 또한 소나무 나이테 중의 ^{3}H와 ^{14}C방사능농도사이의 상관관계를 조사하였으며, 그 결과를 그림 18, 19에 나타내었다. 그림 18로부터 알 수 있듯이 나이테중의 ^{3}H와 ^{14}C방사능농도의 변화 경향은 매우 잘 일치하였다. 소나무 나이테 중의 ^{3}H와 ^{14}C의 방사능 농도 상관관계는 그림 19에서와 같이 상관계수 $R = 0.98$로 아주 좋은 선형적인 상관관계를 보여 주었다. 이 결과로부터 소나무 나이테에 결합되어 있는 ^{3}H (OBT)의 방사능 농도를 측정함으로써 소나무 나이테의 ^{14}C의 농도 변화를 추정할 수 있으며 더 나아가 대기 중의 ^{3}H 뿐만 아니라 ^{14}C의 방사능농도 준위를 파악하는 기초자료로 사용할 수 있는 가능성을 보여주었다.

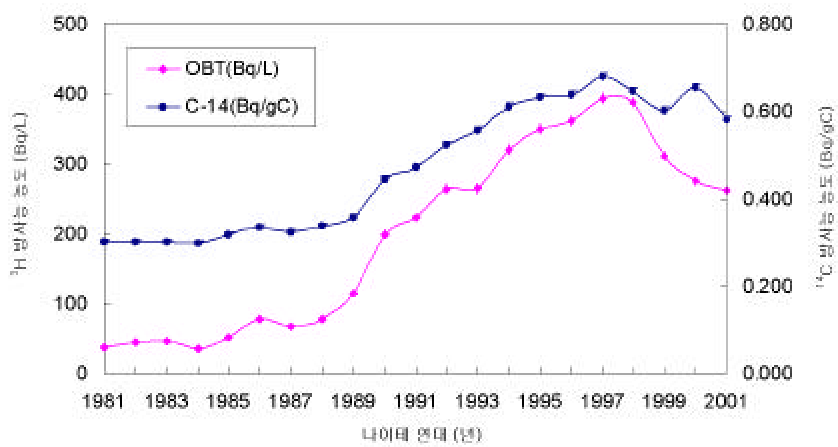

그림 18. 나이테 연대별 ^{3}H 및 ^{14}C의 방사능 농도 변화

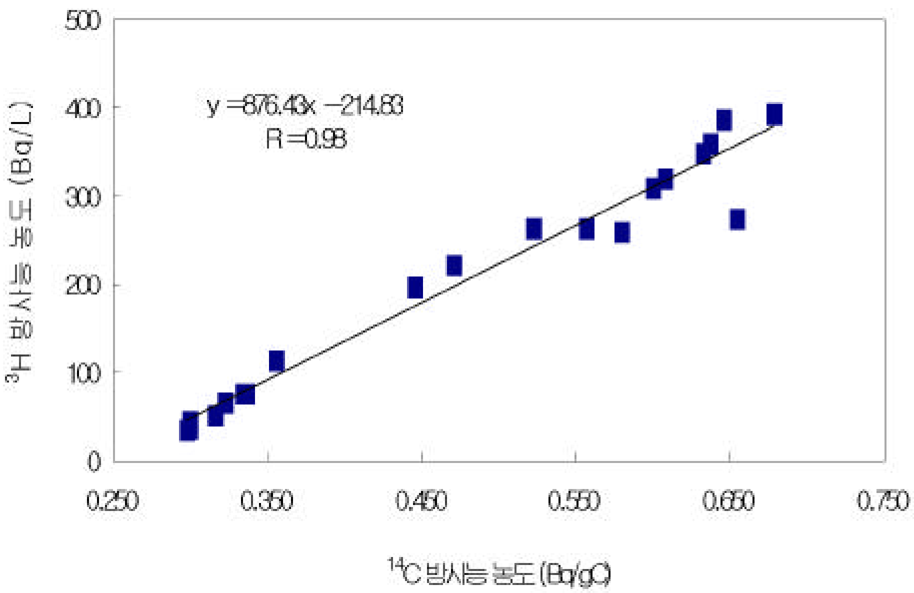

그림 19. **나이테 중의** ^{3}H**와** ^{14}C**의 방사능 농도 상관관계**

V. 결 론

월성원전 주변의 과거 대기 중의 ^{3}H와 ^{14}C의 방사능 농도 준위를 파악하기 위하여 원전 1호기 원자로를 중심으로 남서 방향으로 850 m 떨어진 지점의 소나무를 채취하여 나이테를 1980년도부터 2000년도까지 분리하여 21년동안 연도별로 ^{3}H와 ^{14}C의 방사능 농도를 측정 및 분석하였다. 채취한 소나무에서 화학적전처리를 거쳐 α-cellulose를 추출하였으며, 고압연소와 포집장치를 이용하여 α-cellulose속의 OBT와 ^{14}C를 포집하였다. OBT와 ^{14}C의 β선 측정은 저준위 액체섬광계수기(Liquid Scintillation Counter, Quantulus 1220)를 이용하였다.

소나무 나이테 α-cellulose속의 OBT 의 방사능농도 범위는 34.9-393.4 Bq/L였으며, 월성원전 상업가동 전인 1980부터 1982년까지의 평균 방사능농도는 42.1 Bq/L이었다. OBT 방사능농도는 상업가동 시작 후 서서히 증가하다가 1989년에 급격히 증가하여 1997년에 최대치를 나타낸 다음 감소하는 경향을 나타내었다.

또한 본 실험에서는 나이테 중의 ^{3}H 방사능농도와 방출량 사이의 상관관계를 조사하였는데, 표본 상관관계수 R은 0.77로서 그다지 높지 않았다. 이것은 ^{3}H 방출량외에도 풍향빈도, 풍속, 강수량, 방출시점의 소나무성장환경 및 지표면에 떨어진 강수량의 흐름과 흡수 등 다양한 인자들이 나이테중의 ^{3}H 방사능농도에 영향을 끼친다는 것을 뜻한다.

소나무 나이테 α-cellulose속의 ^{14}C의 방사능농도의 범위는 0.297-0.678Bq/gC이었으며, 상업가동전의 평균 농도는 0.297

Bq/gC로 측정되었으며, ^{14}C는 삼중수소와 마찬가지로 서서히 증가하다가 1989년에 급격히 증가한 후 1996년에 최대치에 도달한 다음 감소하는 경향을 나타내었다. 이와 같이 가동되는 발전소와 가동년수가 증가함에도 불구하고 환경 중으로 방출되는 ^{3}H와 ^{14}C의 방사능농도가 각각 '97년도와 '96년도를 시점으로 감소하기 시작한 것은 원전 측에서 안전운전을 물론 주기적인 정기예방보수와 일상점검을 효율적으로 수행하였을 뿐만 아니라 다양한 ^{3}H와 ^{14}C 발생 저감계획을 수립하여 성실히 수행해 나가고 있는 결과라고 판단하고 있으며 나이테중의 ^{14}C의 방사능농도는 주로 방출량과 풍향빈도의 영향을 많이 받는다고 판단된다.

또한 본 실험에서는 소나무 나이테 α-cellulose속의 ^{3}H와 ^{14}C의 방사능농도 사이의 상관관계를 조사한바 ^{3}H와 ^{14}C의 방사능농도의 상호관계 변화경향은 매우 잘 일치하였으며, 아주 높은 선형적인 상관관계(R=0.98)를 보여주었다.

본 실험을 통하여 소나무 나이테 α-cellulose속의 ^{3}H와 ^{14}C방사능농도를 측정함으로서 과거 대기 중 ^{3}H와 ^{14}C의 방사능농도 준위를 파악하고 나아가서 원전으로부터의 방출량을 추정할 수 있는 가능성을 보여주었을 뿐만 아니라 원전 측에서 발표하는 각종 환경방사능 관리자료를 신뢰케 하였다.

참 고 문 헌

1) **朴相珍 외** 2**인**, "**木材組織과 識別**", **鄕文社**, **서울** (1987) 74-75.
2) Fritz Hans Schweingruber, "Tree Rings", D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, Holland (1988) 99.
3) **손기영**, "**동결건조법에 의한** TFWT**의 농도계측 및 특성조사**", **경북대학교 이학석사학위논문** (1997) 3.
4) **蔡蓮珍** : "**中國考古學**碳**十四年代數据集**", **科學出版社**, **北京**, 233 (1982).
5) F. N. D. Kurie, Phys. Rev. 904 (1934).
6) S.Ruben and M. D. Kamen, Phys. Rev. 549 (1940).
7) S. Ruben and M. D. Kamen, Phys. Rev. 194 (1940).
8) S. D. Korff, Terr. Mag. 133 (1940).
9) H. Godwin, Nature, 195 (1962).
10) P. E. Damon, J. C. Lerman and A. Long, Ann. Rev. Earth Planet. Sci. 457 (1978).
11) P. E. Damon, J. C. Lerman and A. Long, Ann. Rev. Earth Planet. Sci. 94 (1978).
12) T. A. Rafter and G. J. Fergusson, New Zealand J. of Sci. & Tech. 871 (1957).
13) R. Nydal, Geophys. Res. 3617 (1968).
14) B. Bolin, Sci. Am. 125 (1970).
15) **杉本敦子**, **和田英太郎**, Radioisotopes, 366 (1992).
16) **김창규 외** 4**인**, "**소나무 나이테를 이용한 월성 주변 환경중** H-3 **및** C-14**의 과거 농도준위 추적**", **대한방사선방어학회 추계학술발표회 논문집** (1998)
17) Knoll., G. F., "Radiation Detection and Measurement", 3rd ed., Johniley & Sons, Inc., New York (2000) 219-222.
18) Instrument Manual of 1220 Quantulus - Ultra low level liquid scintillation spectrometer, EG&G (1995) Shield-1, 2.

The distribution of concentration of H-3 and C-14 in pine tree ring

Jie Hearm-Cheong

Department of physics, Graduate School,
Pukyung National University

Abstract

In this study, the concentrations of ^{3}H and ^{14}C were analyzed in a pine tree ring(at least 23years old) near a nuclear facility(Wolsung nuclear power plant), and which were ranged from 34.9-393.4Bq/L and 0.297-0.678Bq/gC, respectively. The isolation of α-cellulose was carried out using common chlorite method with a subsequent treatment. The concentrations of ^{3}H and ^{14}C were measured by a liquid scintillation counter.

Both concentrations of ^{3}H and ^{14}C were gradually increases from 1980 to 1997, reaches a maximum, and then decreased. The ^{3}H concentrations and amount of release were not highly correlated while ^{3}H concentrations and ^{14}C concentrations were highly correlated. The result indicates that the another factor such as frequency of wind and rainfall influences on concentration of ^{3}H in tree ring, not only amount of release of ^{3}H.