

저작자표시-비영리-변경금지 2.0 대한민국

이용자는 아래의 조건을 따르는 경우에 한하여 자유롭게

• 이 저작물을 복제, 배포, 전송, 전시, 공연 및 방송할 수 있습니다.

다음과 같은 조건을 따라야 합니다:



저작자표시. 귀하는 원저작자를 표시하여야 합니다.



비영리. 귀하는 이 저작물을 영리 목적으로 이용할 수 없습니다.



변경금지. 귀하는 이 저작물을 개작, 변형 또는 가공할 수 없습니다.

- 귀하는, 이 저작물의 재이용이나 배포의 경우, 이 저작물에 적용된 이용허락조건 을 명확하게 나타내어야 합니다.
- 저작권자로부터 별도의 허가를 받으면 이러한 조건들은 적용되지 않습니다.

저작권법에 따른 이용자의 권리는 위의 내용에 의하여 영향을 받지 않습니다.

이것은 이용허락규약(Legal Code)을 이해하기 쉽게 요약한 것입니다.

Disclaimer 🖃





碩士學位論文

제주 지역 에어로졸의 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th 농도 분석 및 연간 유효선량 평가

濟州大學校 大學院

에너지工學科

李 永 揆

2016年2月



제주 지역 에어로졸의 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th 농도 분석 및 연간 유효선량 평가

指導教授 朴 在 雨

李永揆

이 論文을 工學 碩士學位 論文으로 提出함

2015年 12月

李永揆의 工學 碩士學位 論文을 認准함

審查委員長 張 時 榮 (空)

委員韓忠勳(智

委員 朴在雨

濟州大學校 大學院

2015年 12月



Analysis of ⁴⁰K, ²³⁸U and ²³²Th Concentration in Aerosols of Jeju Area and Evaluation of the Annual Effective Dose

Young-Gyu Lee (Supervised by professor Jae-Woo Park)

A thesis submitted in partial fulfillment of the requirement for the degree of Master of Engineering.

2015.12.

This thesis has been examined and approved.

Thesis director, Si-Young Chang, Korea Atomic Energy Research Institute

Chung-Hun Han, Researcher of Institute for Nuclear science and Technology

Jae-Woo Park, Prof. of Nuclear and Energy Engineering

Date

Department of Nuclear & Energy Engineering

GRADUATE SCHOOL

JEJU NATIONAL UNIVERSITY



목 차

목 차1
LIST OF FIGURES3
LIST OF TABLES5
SUMMARY6
I. 서 론9
II. 측정 및 분석 방법12
1. 채집 장소 및 측정 기기12
1.1 채집 장소12
1.2 측정기기14
2. 분석 방법17
2.1 시료 전처리17
2.2 시료 용액 표준화19
2.3 방사능 농도 산출22
2.4 연간 유효 선량 산출24
2.5 역궤적 분석에 의한 대기 이동경로 조사29
2.6 라듐 등가 지수31

III.	결과 및 고찰3	2
1.	기기검출한계3	12
2. (에어로졸 중 ⁴⁰ K, ²³⁸ U, ²³² Th 의 측정 결과3	13
2.1	에어로졸 중 ⁴⁰ K, ²³⁸ U, ²³² Th 의 방사능 농도3	13
2.2	핵종 간의 상관관계3	17
2.3	대기 현상에 따른 분석4	Ю
3	유효선량 평가 결과4	12
3.1	호흡으로 인한 연간 유효선량 평가4	2
3.2	대기 현상에 따른 연간 유효선량 평가4	١9
4. i	라듐 등가 지수 산정5	i1
5.	역 궤적 분석에 의한 대기 이동경로5	i 4
IV.	결 론6	1
차고므	남	5

LIST OF FIGURES

Fig 1. Location of air sampling site in Jeju Island, Korea.
Fig 2. High volume tape sampler(KIMOTO,195A).
Fig 3. ICP-DRC-MS(Perkin Elmer, model ELAN DRC- II, USA)
Fig 4. Flow chart for separation of TSP Aerosol filter(EPA IO-3).
Fig 5. Microwave digestion system(Milestone, START D, Italy)
Fig 6. Standard calibration curve for ²³⁸ U solution of MSU-100PPM
Fig 7. Standard calibration curve for ²³² Th solution of MSTH-100PPM
Fig 8. Multi-element calibration standard 3 calibration curve for ³⁹ K
Fig 9. The HYSPLIT4 program in the NOAA web site screen
Fig 10. Correlation between ⁴⁰ K, ²³⁸ Uand ²³² Th in TSP aerosols
Fig 11. Correlation between ²³⁸ U and ²³² Th in TSP aerosols
Fig 12. Annual effective dose to various age groups in Jeju island from inhalation ⁴⁰ K, ²³⁸ U
and ²³² Th in TSP aerosols: (a) F type Male, (b) F type Female
Fig 13. Annual effective dose to various age groups in Jeju island from inhalation ⁴⁰ K, ²³⁸ U
and ²³² Th in TSP aerosols: (a) M type Male, (b) M type Female
Fig 14. Annual effective dose to various age groups in Jeju island from inhalation ⁴⁰ K, ²³⁸ U
and ²³² Th in TSP aerosols: (a) S type Male, (b) S type Female
Fig 15. Intercomparison of the annual average effective dose between Jeddah city, Saud
Arabia with Jeju, Korea: (a) Jeddah city, Saudi Arabia (b) Jeju, Korea48
Fig 16. The annual average effective dose by atmospheric phenomenon in the Gosan location
Jeju island from in halation of ⁴⁰ K, ²³⁸ U, and ²³² Th (each vertical bar graph denotes the
range of effective dose).
Fig 17. Five-day backward trajectory ending between 3 January and 15 April 2013 56
Fig 18. Five-day backward trajectory for non-event case ending at 9 January 2013 57



Fig 19. Five-day backward trajectory for fog-mist case ending at 21 January 2013 58	
Fig 20. Five-day backward trajectory for haze case ending at 21 January 2013 59	
Fig 21. Five-day backward trajectory for Asian-dust case ending at 19 March 2013 60	

LIST OF TABLES

Table 1 Reference values for daily time budgets for members of the general public
Table 2 Reference values for daily time budget and ventilation parameters at each exercise
level for members of the public at various ages
Table 3 Effective dose coefficients e for inhalation (AMAD= 1μm) of radionuclides for
members of the public
Table 4 Instrumental Detection Limit(IDL) and Variation of Coefficient(CV) for ICP-DRC-
MS (n=7)
Table 5 The associated ⁴⁰ K activity concentrations at the twenty-nine samples at Gosan in
Jeju island, Korea
Table 6 The associated ²³⁸ U activity concentrations at the twenty-nine samples at Gosan in
Jeju island, Korea
Table 7 The associated ²³² Th activity concentrations at the twenty-nine samples at Gosan in
Jeju island, Korea
Table 8 Airborne ⁴⁰ K, ²³⁸ U and ²³² Th activity concentrations by atmospheric phenomenon in
the Gosan location, Jeju Island41
Table 9 The Radium equivalent index at the twenty-nine samples at Gosan in Jeju island,
Korea
Table 10 Airborne 40K, 238U and 232Th activity concentrations and the Radium equivalent
index by atmospheric phenomenon at Gosan location in Jeju Island53



SUMMARY

The atmospheric total suspended particulates (TSP) aerosols were collected at Gosan site of Jeju Island, which is one of the background sites of Korea, during January to April 2013. This study analyzed using Inductively Coupled Plasma - Dynamic Reaction Cell - Mass Spectrometer (ICP-DRC-MS) the concentrations of potassium, uranium and thorium, and evaluated the annual effective dose by breathing from the results. A radium equivalent index (Ra_{eq}) , which is known as a radiation risk coefficient through the radioactive concentrations of naturally occurring potassium, uranium and thorium, was added. Also, the backward trajectory analyses were conducted to check the inflow of the aerosols collected.

As a result, it was observed during this study that the radioactive concentrations of 40 K, 238 U and 232 Th were within the scope of 1.341 ~ 46.483 µBq/m³ (mean: 14.188 \pm 11.451 µBq/m³), 0.006 ~ 1.032 µBq/m³ (mean: 0.263 \pm 0.226 µBq/m³), 0.001 ~ 2.579 µBq/m³ (mean: 0.226 \pm 0.282 µBq/m³), respectively. In the UNSCEAR 2000 Report, the radioactive concentration baselines of 238 U and 232 Th among the air particles were 1.0 and 1.5 µBq/m³, respectively. In this study, an average of low concentration scope was shown except the specific meteoric phenomenon.

During Asian dust periods, the concentrations of 40 K (33.221 \pm 12.333 μ Bq/m³), 238 U (0.788 \pm 0.260 μ Bq/m³), and 232 Th (0.865 \pm 0.252 μ Bq/m³) were highly as 3.59, 5.51 and 7.86 times, respectively, compared to the non-event periods. For the haze event days, 40 K (34.729 \pm 10.792 μ Bq/m³), 238 U (0.730 \pm 0.261 μ Bq/m³), and 232 Th (0.608 \pm 0.475 μ Bq/m³) were highly as 3.75, 5.10 and 5.53 times, respectively, compared to the non-event days. For the fog-mist event days, 40 K (19.970 \pm 15.824 μ Bq/m³), 238 U (0.371 \pm 0.374 μ Bq/m³), and 232 Th (0.329 \pm 0.451 μ Bq/m³) were highly as 2.16, 2.59 and 2.99 times, respectively, compared to the non-event days.

The correlations between the studied natural isotopes is a good positive correlation



between 232 Th and 238 U ($R^2 = 0.9012$), supporting the conclusion that they originated from the same source, mostly the crust. The average calculated 232 Th/ 238 U ratio was 1.01, which is close to the world average of unity (UNSCEAR, 2000). On the other hand, weak positive correlations between 232 Th and 40 K and between 238 U and 40 K were found, supporting the conclusion that 40 K originated from other sources besides the crust.

The inhalation annual effective radiation dose (default mode F, Male) to the public due to natural isotopes of the airborne TSP was in the range 16.2 ~ 77.89 nSv/y, depending on the age group. Because of the variations in air breathing rate, the total annual dose due to the natural radioactivity in airborne TSP increases for the older age groups. It is obvious that ²³²Th is the main contributor to the inhalation annual effective dose. ²³²Th was found to be responsible for 98.4 ~ 99.1% of the total dose. On the other hand, ⁴⁰K was found to slightly contribute to the total dose. Since radium equivalent index is not efficient in expressing the inhalation annual effective dose, it was not included in the calculation of the total inhalation annual effective radiation dose.

In order to check the migratory routes of the air particles, the backward trajectory analyses were carried out using the HYSPLIT 4 model provided by the NOAA(National Oceanic and Atmosphere Administration) in the U.S. As a result of classifying into 3 zones and comparing the moving route of air currents by zone, the inflow routes of air currents were 48.3 % in zone I (China), 10.3 % in zone II (Korean Peninsula), 3.4 % in zone III (Japan & North Pacific Ocean), and 37.9 % in the other overlap zone, which showed that the inflow route of air currents from China was the highest during this study.

It was observed that a Radium equivalent index (Ra_{eq}), which is known as a radiation risk coefficient through the radioactive concentrations of naturally occurring potassium, uranium and thorium, was calculated as $0.111 \sim 6.263 \ \mu Bq/m^3$ (mean: $1.679 \pm 1.516 \ \mu Bq/m^3$).

Jeju Island with less pollution source and low population density is also one of the best places as a background area in Asia. It is judged that the results become a preliminary data on the impact of fine dust from China, which has been recently intensified, on the Korean



Peninsula. Furthermore, unlike the previous weather in which the Asian dust blows throughout the peninsula only during the spring season, but now frequently occur even in the autumn. Therefore, it is judged as necessary to observe such Asian dust phenomenon in the long term through collecting a large number of the TSP aerosol filters.

I. 서 론

자연으로부터 발생하는 방사성 핵종들은 지구가 생성된 후 냉각되어 가면서 45억년의 시간이 흐르는 동안 단 반감기의 핵종은 점차 소멸하고, 현재 남아있는 자연 방사성 핵종들은 반감기가 10억년 이상의 것들과 이들의 붕괴 산물인 딸핵종이 있다. 이러한 자연 방사성 핵종은 일반적으로 강과 해안의 암석, 토양, 모래, 퇴적물 등에 공통으로 존재하며, 심지어 우리 가정에서의 건축 자재에도 포함되어 있다(UNSCEAR, 1982; R Mehra, 2010).

자연 방사성 핵종은 ²³⁸U (uranium) 및 ²³²Th (thorium) 계열 중 이들의 붕괴 생성물들을 포함한다. 우라늄은 가장 무거운 자연원소이며 동위원소(isotope) ²³⁸U, ²³⁵U, ²³⁴U 의 자연 존재비는 99.27%, 0.72%, 0.0057% 이고 토륨의 자연 존재비는 100%이다. 우라늄과 토륨은 보통 방사능의 세기보다는 질량농도로 표시되는데 이것은 붕괴에 따른 방사능 변동을 고려할 필요가 없고 질량분석법으로 쉽게 측정할 수있기 때문이다. 또한, 자연 방사성 핵종 칼륨은 지구 지각 구성 물질이고 자연에서 널리 분포되어 있다. 칼륨의 동위원소 ⁴¹K, ⁴⁰K, ³⁹K 의 자연 존재비는 6.7302%, 0.0117%, 93.2581%이다.

자연 방사성 핵종들의 농도는 전 세계 각 지역의 토양, 모래, 암석 등 지질에 따라 다르게 나타난다. 그 중 토양의 방사능 농도는 환경 방사능 측정에서 있어서 인간, 동·식물에 영향을 확인하는 하나의 지표로 알려져 있다(Veiga, 2006; H.A. Al-Trabulsy, 2011). 자연 방사성 핵종의 함유물질은 암석, 토양, 모래 이외에도 대기 입자에서도 미량의 농도가 검출되며 바람의 세기, 방향에 따라 차이가 있다 (Kazuki Iwaoka, 2014; A.Zytoon, 2014). 대기 입자 중 ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도 세계 평균치는 각각 1.0, 0.5 μBq/m³으로 예상하고 있다(UNSCEAR 2000).

자연 방사성 핵종은 전체 유효 선량의 82%을 차지함으로써 주된 원인을 제공하는 중요한 물질로 알려져 있으며 ²³⁸U과 ²³²Th계열과 ⁴⁰K의 섭취로 인한 유효선량을 각각 1.26, 0.29 mSv로 예상하고 있다(UNSCER 2000).

대기 입자를 채집하는 필터의 간격(size)에 따라 TSP, PM10, PM25가 있으며, 대 기 현상에 따라 농도가 다르게 관측되고 있다. 대기 중의 먼지 현상은 물이나 얼 음 입자는 거의 포함되어 있지 않고, 주로 고체 입자들이 대기 중에서 떠다니거 나 바람에 의해서 불려 오르는 현상을 말한다. 먼지 현상의 종류에는 연무(haze). 황사(Asian dust) 등이 있다. '연무'는 맨눈으로 보이지 않는 극히 작고 건조한 고 체입자가 대기 중에 떠다니고 있는 현상으로서 자동차 배기가스, 공장의 연기로 인한 대기 오염이며, 그 수가 많기 때문에 대기가 우윳빛으로 흐려 보이고, 가시 거리 1 km 이상, 상대습도가 75% 이하인 경우를 말한다. '황사'는 먼지 연무의 일 종으로서 주로 아시아 대륙의 건조지대에서 불려 올라간 다량의 흙먼지가 장거 리 수송되어 하늘을 덮고 떠다니며 서서히 하강하는 현상을 말한다. 안개와 비슷 한 현상으로 '박무(fog-mist)'는 2.5 μm 이하의 미세한 물방울이나 황산염, 질산염 과 같은 흡습성 입자가 대기 중에 떠 있는 현상으로, 가시거리 1 km 이상이고 상 대습도가 80~90% 이상인 경우를 말한다. 이러한 현상들로 인해 대기 질이 악화 하고, 에어로졸이 대기오염물질의 한 성분으로 인간과 동 식물뿐 아니라 시정 장 애, 기후변화의 한 요소로 작용함에 따라 그 관심이 집중되고 있다(Young-Sin Chun, 2003).

본 연구에서는 오염원의 방해가 적고, 인구밀도가 낮은 제주도 지역에서 채집한 TSP (Total Suspended Particulates) 에어로졸 필터 내의 자연 방사성 핵종 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도와 호흡으로 인한 연령별 연간 유효선량을 산출하여 대기 현상에 따른 차이를 분석하고자 한다. 그리고 채집된 에어로졸의 유입경로를확인하기 위한 역궤적 분석과 자연 방사성 핵종 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도를

통한 방사선 위험 지수로 알려져 있는 라듐 등가 지수(radium equivalent index, $\mathbf{R}a_{eq}$) 의 정의와 계산방법을 추가하였다.

II. 측정 및 분석 방법

1. 채집 장소 및 측정 기기

1.1 채집 장소

본 연구에서 활용한 TSP 에어로졸 공기시료의 채집 장소인 '고산측정소'는 제주특별자치도 제주시 한경면 고산리 소재 수월봉(33·28°N, 127.17°E)에 위치한 제주 고층레이더 기상대로부터 서쪽으로 약 300 m 떨어진 해발 72 m의 해안가 언덕에 자리하고 있다. 채집 현장에는 5평 크기의 컨테이너 설비를 갖춰있고, 컨테이너 내부에는 장비 작동이 가능하도록 에어컨, 제습기, AVR 전원공급 장치 등이설치되어 있다.

에어로졸 공기 샘플들의 채집 장소는 Fig 1에 나타내었다. 제주도는 중국, 한반도, 일본에 둘러싸여 있으며, 서해와 동중국해의 경계에 있다. 제주도 고산 지역은 아시아 대륙에 마주하는 제주도의 서쪽 가장자리에 위치하고 거주 지역에서 외떨어진 곳이다. 고산 지역에서는 복사성 특성 및 물리 화학적 유출에 따른 아시아 대륙의 인위적인 에어로졸에 대해 이해 하기 위해 ACE-Asia (Aerosol Characterization Experiment-Asia) 와 ABC-EAREX 2005 (Atmospheric Brown Cloud-East Asia Regional Experiment 2005) 등 여러 국제 실험들이 시행되고 있다(Barry J. Huebert, 2003; Teruyuki Nakajima, 2007).





Fig 1. Location of air sampling site in Jeju Island, Korea.

1.2 측정기기

1.2-1 High Volume Tape Sampler

TSP 에어로졸 시료는 일본 KIMOTO Electric사에서 제작한 high volume tape sampler (model 195A)를 사용하여 채취하였다. 이 sampler는 roll type의 polytetrafluoroethylene 필터(PTFE. 100 mm × 10 m)를 사용하여 연속적으로 시료를 채취할 수 있는 자동시스템이며, 시료의 채취시간을 임의로 조절할 수 있는 timer가 부착되어 있다. sampler의 흡입관(길이 7 m, 구경 38 mm인 flexible hose)은 컨테이너의 측면을 관통시켜 지상 6 m 높이의 에어로졸을 채취할 수 있도록 설치되어 있다. 이때 흡입 공기의 유속은 초기속도가 대략 170 L/min이 되도록 하였으며 채취시간은 24시간으로 조절하였다. Fig 2는 high volume tape sampler (model 195A)의 모습이다.

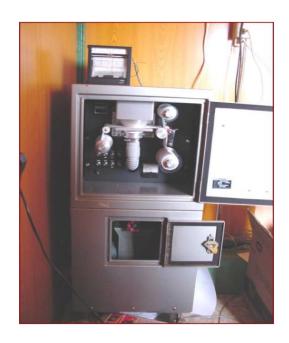


Fig 2. High volume tape sampler(KIMOTO, 195A).

1.2-2 Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometer

PTFE 필터에 흡착된 TSP 에어로졸 입자의 질량과 방사능을 정밀하게 분석하기 위하여 ICP-MS (Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometer)를 사용하였다. ICP-MS는 미국 Perkin Elmer사에서 제작된 유도 결합 플라스마 질량분석기(Model ELAN DRC II)와 운용 소프트웨어 ELAN로 구성되어 있다. 본 연구에서 사용한 DRC (Dynamic Reaction Cell) 모델의 특징은 일반적으로 μg/ml까지 측정 가능한기존의 ICP-MS 모델과 달리 훨씬 더 낮은 pg/ml 단위까지 정밀한 질량 분석이가능하며 핵종간의 상호간섭을 제거 및 배제하는 기법이 도입된 최신기기이다. Fig 3에 본 연구에서 사용한 ICP-DRC-MS의 모형을 나타내었다.

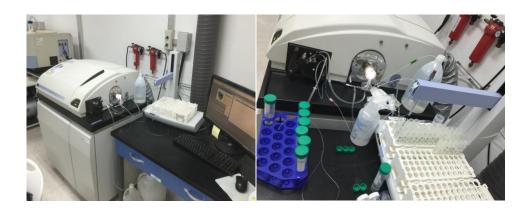


Fig 3. ICP-DRC-MS(Perkin Elmer, model ELAN DRC- II, USA).

2. 분석 방법

2.1 시료 전처리

TSP 필터 시료를 US EPA ('Compendium of Methods for the Determination of Inorganic Compounds in Ambient Air(1999)' Method IO-3: Chemical Species Analysis of Filter-Collected Suspended Particulate Matter)방법으로 진행하였다.

Fig 4와 Fig 5에서는 EPA IO-3의 방법의 순서를 간략히 소개하고 마이크로파 분해 시스템(Milestone, START D, Italy)을 사용하는 모습을 나타내었다. EPA IO-3의 방법으로 우선 TSP 에어로졸 필터를 시료가 채취된 부분을 원형으로 잘라낸 뒤 여러 번 잘게 잘랐다. 잘린 TSP 에어로졸 필터를 10 페리의 산 용액(5.55% HNO₃/16.75% HCl)과 함께 마이크로파 시스템에 장착되어있는 PFA (perfluoroalkoxy) 테플론 용기에 투입하였다. 이때 내부와 외부의 물질들과 혼합되지 않게 밀봉하고마이크로파는 1000 W와 온도 180℃로 상승시킨 후 이 온도에서 15분간 유지하고서서히 상은까지 냉각시켰다. 마이크로파 산분해를 거친 용액은 주시기 필터 (Whatman, PVDF syringe filter, 0.45 μg/ml)를 사용하여 녹아 나왔고, 이를 초순수와 5 페 산 용액(3% HNO₃/8% HCl)을 용량플라스크 25 페가 되도록 희석 및 clean 작업(테플론 용기 내부 다시 세척)을 하여 분석용 시료로 이용하였다.

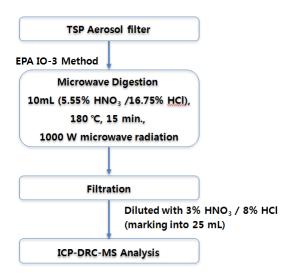


Fig 4. Flow chart for separation of TSP Aerosol filter(EPA IO-3).

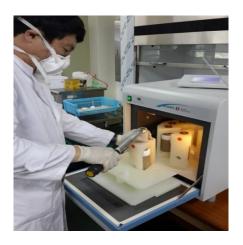


Fig 5. Microwave digestion system(Milestone, START D, Italy).

2.2 시료 용액 표준화

High Volume Tape Sampler를 사용하여 채집된 TSP 필터 시료의 화학처리가 끝난후 ICP-DRC-MS 기기로 측정하기에 앞서 우선 측정하고자 하는 원소(³⁹K, ²³⁸U, ²³²Th)에 대해 분석용 표준용액으로 농도교정을 실행해야 한다.

²³⁸U과 ²³²Th의 분석용 표준용액으로 미국 Inorganic Ventures사에서 제조하는 MSU-100PPM (100 μg/ml, 1.4 % HNO₃), MSTH-100PPM (100 μg/ml, 4 % HNO₃)을 사용하였다. ³⁹K의 분석용 표준용액으로 미국 Perkin Elmer사에서 제조하는 Multi-element Calibration Standard 3 (10 μg/ml, 5% HNO₃, Product number: N9300233)을 사용하였다. 이 물질들은 사용할 수 있는 가장 높은 순도의 물질로 만들어졌으며, 국제적으로 공인 된 ISO 17025, ISO 9001 품질 보증을 통과한 물질이다. Multi-element Calibration Standard 3의 경우 표준물질의 29 가지의 다중 요소들로 구성되어 있다.

측정하고자 하는 시료 내의 원소 농도에 따라서 저농도 성분 ²³⁸U, ²³²Th를 측정하기 위해 전용 분석용 표준용액 100 μg/ml(= 100 ppm)의 농도를 1000~50 ppt (1000~50 pg/ml)의 범위로 무게법을 이용하여 제조하였다. 고농도 성분 ³⁹K를 측정하기 위해 분석용 표준용액 10 μg/ml (= 10 ppm) 의 농도를 5000~500 ppb (1000~500 ng/ml)의 범위로 무게법을 이용하여 제조하였다. Fig 6에서 Fig 8은 ICP-DRC-MS 기기의 ELAN software 에서 작성된 ³⁹K, ²³⁸U, ²³²Th의 검량곡선을 나타내었다. 표준용액을 제조하여 검량곡선을 작성한 결과 2가지 이상의 확률 변수또는 관측 데이터 값 사이의 관계를 통계 학적 유형의 정량적 측정값을 뜻하는 상관계수(correlation coefficient: R)는 1에 근접하게 된 것을 보여준다.

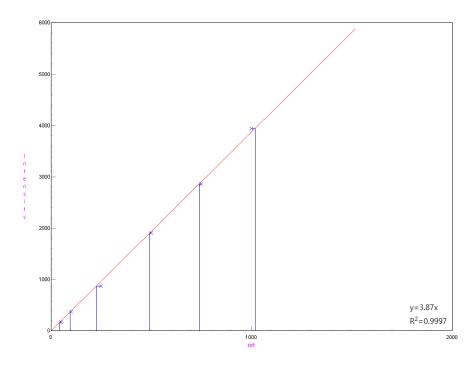


Fig 6. Standard calibration curve for ²³⁸U solution of MSU-100PPM.

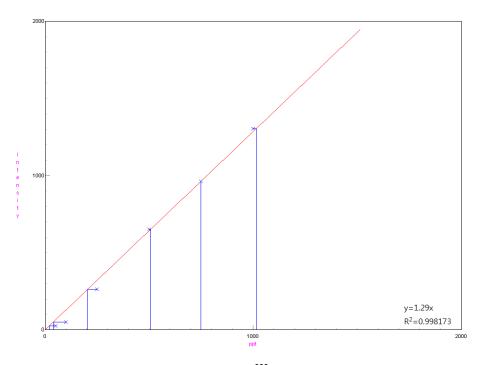


Fig 7. Standard calibration curve for 232 Th solution of MSTH-100PPM.

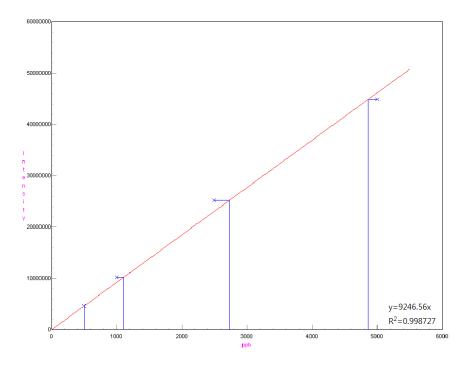


Fig 8. Multi-element calibration standard 3 calibration curve for $^{39}\mathrm{K}.$

2.3 방사능 농도 산출

ICP-DRC-MS와 식(2.1)을 사용하여 화학처리가 완료된 PTFE 필터 내의 핵종 i (³⁹K, ²³⁸U, ²³²Th)의 농도(ρ_i)를 구하였다.

식 (2.1)에 표시된 채집시간(t = 1440 min), 채집유량(m = 130 ~ 170 L/min)은 high volume tape sampler(Fig 2)기기에서 설정해준 값들이다. 초순수와 5 ml 산 용액(3% HNO₃/8% HCl)에 희석하여 최종으로 만들어진 용량플라스크(L = 25 ml)에 대한 인수들도 계산 식에 포함하였다. 또한, 마이크로파 분해 시스템(Fig 5)으로 조사된용액을 모두 옮기고 비어있는 테플론 용기를 다시 세척하여 'clean' 시료를 측정한 농도를 측정된 핵종의 농도(c_i)에 포함하였고, 채집하지 않은 3개의 PTFE 필터 시료를 같은 방법으로 화학처리를 한 후 측정된 blank 농도(c_{bk})를 평균한 값들을 포함하였다. 이렇게 실험 중에 잡혔던 조건들을 조합하여 다음 식(2.1)에서는 PTFE 필터의 핵종 i (³⁹K, ²³⁸U, ²³²Th)에 대한 측정농도(ρ_i)를 산출하였다.

$$\rho_{i} = \frac{(c_{i} - c_{bk}) \times L}{(t \times \dot{m})}$$
(2.1)

ρ_i : 핵종 i (³⁹K, ²³⁸U, ²³²Th)의 농도(pg/m³)

c_i : ICP-DRC-MS로 측정한 핵종 i (³⁹K, ²³⁸U, ²³²Th)의 농도(pg/ml)

c_{bk} : blank 평균측정농도(pg/ml)

L : 용량플라스크 양(25 ml)

t : 채집시간(min)

m : 채집유량(L/min)



식(2.1)에서 계산된 핵종 i (³⁹K, ²³⁸U, ²³²Th)의 측정농도(ρ_i)로부터 식(2.2)를 이용하여 핵종 i (⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th)의 방사능 농도(A_i)를 산출하기 위해 각 핵종의 반감기 (s); ⁴⁰K (1.28 × 10⁹ y), ²³⁸U (4.468 × 10⁹ y), ²³²Th (1.405 × 10¹⁰ y)와 핵종의 원자량 (M_i); ⁴⁰K (39.964), ²³⁸U (238.05), ²³²Th (232.038)을 적용하였다. ³⁹K에 대한 ⁴⁰K의 방사능 계산을 위해 질량수 39, 40, 41인 칼륨 핵종 중에서 ⁴⁰K의 자연 존재비율(m_e) 0.0117%를 적용하였다. 그리고 ²³⁸U, ²³²Th의 자연존재비율(m_e)을 각각 99.27%, 100%로 계산하였다(Michael Berglund, 2011). 다음과 같이 식(2.2)에는 PTFE 필터 내의 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도 계산 식을 나타내었다.

$$A_i = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \times \frac{\rho_i \times m_e}{M_i} \times N$$
 (2.2)

A_i : 핵종 i (⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th)의 방사능 농도(Bq/m³)

ρ_i : 핵종 i (²³⁸U, ²³²Th, ³⁹K)의 농도(pg/m³)

m_e : 자연 존재비율(%)

T_{1/2} : 반감기(s)

 M_i : 핵종의 원자량(g/mol)

N : 아보가드로 수(6.022×10²³ mol⁻¹)

2.4 연간 유효 선량 산출

본 연구에서는 TSP 필터 시료에서 측정된 천연방사성핵종 40 K, 238 U, 232 Th 농도의 결과를 얻음과 동시에 호흡으로 인한 연간 유효 선량($E_{k,i}$)을 계산하기 위해 UNXCEAR 2000 보고서에 작성된 식(2.3)을 참고하였다.

$$E_{h,i} = A_i \times B \times d_{h,i} \times (1 - F_0 + F_0 F_r)$$
 (2.3)

 $E_{h,i}$: 연간 유효선량(Sv/y)

A_i : 핵종 i (⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th)의 방사능 농도(Bq/m³)

B : 연령별 숙면과 활동들을 고려한 호흡률(m³/day)

 d_{hi} : 호흡으로 인한 방사능당 유효선량 환산계수(Sv/Bq)

 F_0 : 실내와 실외의 거주 인자

F_r : 내부와 외부 공기 농도의 비율(0.3)

식(2.3)은 호흡으로 인한 연간 유효선량은 1개월, 1살, 5살, 10살, 15살과 성인으로 ICRP에서 확인된 6개 그룹으로 계산하였다. 각각의 연령에 대한 실내와 실외의 거주 인자(F_0)는 Table 1, 연령별 숙면과 활동들을 고려한 호흡률(B)은 Table 2, 공기역학적 평균 활동 직경(Activity Median Aerodynamic Diameter: AMAD) 1 μ m으로 결정된 일반인에 대한 핵종마다 섭취한 방사능 당 유효선량 환산계수($d_{h,i}$)을 Table 3에 나타내었다(ICRP 2002; ICRP 2012; A. Zytoon, 2014). 내부와 외부에 대한 공기 농도의 비율(F_r)은 0.3으로 가정하였다(UNSCEAR2000).

24시간을 기준으로 연령대별로 집에서 잠이든 시간, 깨어있는 시간, 다른 곳에 머무는 시간과 외부에 있는 시간에 대해 실내와 실외의 거주 인자(Indoor Occupancy Factor)를 Table 1에 나타냈다. 3개월 유아의 경우 집에서 잠이 든 17시간과 깨어있는 7시간에 대한 실내와 실외의 거주 인자(F₀) 값은 1에 해당한다. 성인 남성의 경우 집에서 잠이 든 8.5시간, 깨어있는 7시간과 다른 곳에 머무는 6.5시간에 대한 실내와 실외의 거주 인자(F₀) 값은 0.92에 해당한다.

Table 1 Reference values for daily time budgets for members of the general public

	Time budge	et (h/day)					
Location	3 months	1 year	5 years	10 years	15 yea	rs	Adult	
					Male	Female	Male	Female
Indoors at Home Asleep	17	14	12	10	10	10	8.5	8.5
Awake	7	5	6	8	7	9	7	9.5
Elsewhere (e.g. at work)		4	3	3	4	3	6.5	4
Outdoors		1	3	3	3	2	2	2
Indoor Occupancy Factor (F ₀)	1	0.96	0.88	0.88	0.88	0.92	0.92	0.92

연령별 숙면과 활동들을 고려한 호흡률(B)을 Table 2에 나타냈다. 3개월 유아의경우 24시간을 기준으로 17시간의 숙면과 7시간의 가벼운 움직이는 활동을 하여하루 2.8 m³의 호흡을 한다. 성인 남성의 경우 8시간의 숙면, 6시간 앉고, 9.8시간가벼운 움직이는 활동을 하고, 0.25시간 격한 활동을 하여 하루 22.2 m³의 호흡을한다.

Table 2 Reference values for daily time budget and ventilation parameters at each exercise level for members of the public at various ages

Exercise level	3	months	S		1 year				5 years	
Exercise level	h	h	h	h	m ³ /h	m^3	1	1	m ³ /h	m^3
Sleep	17	0.09	1.5	14	0.15	2.1		12	0.24	2.9
Sitting				3.3	0.22	0.73	4	0.4	0.32	1.3
Light exercise	7.0	0.19	1.3	6.7	0.35	2.3	8	3.0	0.57	4.6
Heavy exercise										
Total (m ³ /day)			2.8			5.1				8.8
Exercise level	1	0 years		15 y	ears (n		1:	5 ye	ears (fe	
Exercise level	h	m ³ /h	m^3	h	m ³ /h	m^3	1	1	m ³ /h	m^3
Sleep	10	0.31	3.1	10	0.42	4.2		10	0.35	3.5
Sitting	4.7	0.38	1.8	5.5	0.48	2.6	7	0.	0.40	2.8
Light exercise	9.3	1.1	10.3	7.5	1.38	10.4	6	5.8	1.3	8.8
Heavy exercise				1.0	2.92	2.9	0.	25	2.6	0.65
Total (m ³ /day)			15.2			20.1				15.8
Emansian lavel	Ad	ult (ma	le)	Adı	ılt (fem	ale)	-			
Exercise level	h	m ³ /h	m ³	h	m ³ /h	m ³				
Sleep	8.0	0.45	3.6	8.5	0.32	2.7				
Sitting	6.0	0.54	3.2	5.4	0.39	2.1				
Light exercise	9.8	1.5	14.7	9.9	1.3	12.9				
Heavy exercise	0.25	3.0	0.75	0.19	2.7	0.52				
Total (m ³ /day)			22.2			18.2				

공기역학적 평균 활동 직경(AMAD)이 $1 \mu m$ 으로 결정된 일반인에 대한 핵종마다 섭취한 방사능 당 유효선량($d_{h,i}$)을 Table 3에 나타냈다. 섭취유형에 따라서 F, M, S type으로 구분하고 연령대별 핵종마다 섭취한 방사능 당 유효선량을 보여준다. F type(fast rate of absorption)은 호흡 기관으로부터 혈액에 순조롭게 흡수될 때 녹아 붙는 물질들의 유형, M type(moderate rate of absorption)은 호흡 기관으로부터 혈액에 중간 단계로 흡수될 때 녹아 붙는 물질들의 유형, S type(slow rate of absorption)은 호흡 기관에서 비교적 용해되지 않았을 때 녹아 붙는 물질들의 유형을 의미한다.

Table 3 Effective dose coefficients e for inhalation (AMAD= 1μ m) of radionuclides for members of the public

Nuclide	T	Tyma	Infant		f_1	e(Sv/Bq)				
Nuclide	T _{1/2}	Type	f_1	e(Sv/Bq)	≥ 1year	1 year	5years	10years	15years	Adult
K-40	1.28E9 y	F	1.00	2.4E-08	1.0	1.7E-08	7.5E-09	4.5E-09	2.5E-09	2.1E-09
U-238	4.468E9 y	F	0.04	1.9E-06	0.02	1.3E-06	8.2E-07	7.3E-07	7.4E-07	5.0E-07
		M	0.04	1.2E-05	0.02	9.4E-06	5.9E-06	4.0E-06	3.4E-06	2.9E-06
		S	0.02	2.9E-05	0.002	2.5E-05	1.6E-05	1.0E-05	8.7E-06	8.0E-06
Th-232	1.405E1 y	F	0.005	2.3E-04	0.0005	2.2E-04	1.6E-04	1.3E-04	1.2E-04	1.1E-04
		M	0.005	8.3E-05	0.0005	8.1E-05	6.3E-05	5.0E-05	4.7E-05	4.5E-05
		S	0.005	5.4E-05	0.0005	5.0E-05	3.7E-05	2.6E-05	2.5E-05	2.5E-05
Ra-226	1600 y	F	0.6	2.6E-06	0.3	9.4E-07	5.5E-07	7.2E-07	1.3E-06	3.6E-07
		M	0.2	1.5E-05	0.1	1.1E-05	7.0E-06	4.9E-06	4.5E-06	3.5E-06
		S	0.02	3.4E-05	0.01	2.9E-05	1.9E-05	1.2E-05	1.0E-05	9.5E-06

Type F materials: Deposited materials that are readily absorbed into blood from the respiratory tract (<u>fast rate of absorption</u>)

Type M materials: Deposited materials that have intermediate rates of absorption into blood from the respiratory tract (moderate rate of absorption)

Type S materials: Deposited materials that are relatively insoluble in the respiratory tract (slow rate of absorption)

f₁: Absorbed fraction to body fluid



2.5 역궤적 분석에 의한 대기 이동경로 조사

연구 기간에 채취한 대기 에어로졸의 유입경로를 추적하기 위하여 역 궤적 분석 (backward trajectory analysis)을 수행하였다. 제주도는 인구밀도가 낮고 자체 오염원이거의 없는 청정지역이다. 그러나 제주도 대기 질은 외부에서 유입된 미세입자나 여러 오염물질의 영향을 받는 것으로 나타나고 있다. 따라서 측정 기간에 기단의 이동 경로를 추적하면서 이러한 장거리 이동 경로를 파악할 수 있다. 이를 위해 고산 지역의 TSP 에어로졸 분석 결과를 기초로 천연방사성핵종 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th을 대상으로역 궤적 분석을 하여 이들 성분의 유입 경로를 추적하였다. 이들 성분의 분석 데이터 중 기상현상에 따라 연무, 박무, 황사, Non-event로 분류하여 시료의 채취 일을 기준으로 이 시기의 기단(air mass) 이동궤적을 추적하여 유입 경로를 추적하였다.

NOAA에서 제공하는 HYSPLIT4 프로그램 화면을 스크랩하여 Fig 9에 나타내었다. 역 궤적 분석에는 미국 해양대기국 NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration) 에서 제공하는 HYSPLIT4 (Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory) 모델을 이용하였다. 또한, 역 궤적 분석에 사용된 풍향, 풍속 자료는 NOAA의 북반구 FNL (FiNaL run at NCEP) 자료를 이용하였다. FNL 자료의 수평 격자는 위도와 경도 각각 190.5 km이며, 수직 구조(대기압)는 지표부터 20 hPa까지 14단계로 구성되어 있다. 또 중국에서 발생한 대기오염물질의 경우 대량 4일 이내에 한반도에 도달한다는 점을 고려하여 역궤적 분석의 묘사시간은 5일(120시간)로 설정하였다. 측정 지점의 좌표는 고산(33·28° N, 127.17° E)을 기준으로 설정하였다(Hwa-Suk Kang, 2008).

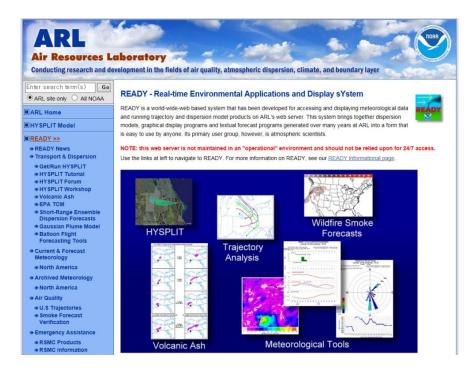


Fig 9. The HYSPLIT4 program in the NOAA web site screen.

2.6 라듐 등가 지수

시료 내의 방사능 중 라듐 등가 지수(Radium equivalent index, Ra_{eq})는 널리 사용되는 방사선 위험 지수이다. 라듐 등가 지수는 환경 방사능의 생물학적 위험 지수를 예측한 다양한 모델들 중 하나이다. 즉, ²²⁶Ra, ²³²Th, ⁴⁰K 의 서로 다른 농도를 함유하는 샘플의 특정한 활동들을 비교하기 편리한 지표이다. 토륨의 259 Bq/kg, 포타슘의 4810 Bq/kg, ²²⁶Ra 370 Bq/kg이 ²²⁶Ra 핵종의 1 mg 방사능 농도와 같은 효과를 가질 것이라는 가정에 의해 도입된 용어이다. 또한, 라듐 등가 지수는 ²²⁶Ra의 10 Bq/kg에서 ²³²Th, ⁴⁰K이 각각 7 Bq/kg과 130 Bq/kg의 동일한 감마 선량률을 생성한다는 가정 아래에 정의된 것이다. Hamilton equation 식에서는 우라늄과 라듐이 영향을 주는 것이 같으며, 토륨은 1.429만큼 더 영향을 미치고, 포타슘은 0.077만큼 라듐의 정도를 의미한다. 식(2.4)에는 라듐 등가 지수 계산식을 나타내었다(Sroor, 2002; H.A. Al-Trabulsy, 2011; Huda Al-Sulaiti, 2012; A. Zytoon, 2014; S Mohapatra, 2015).

$$Ra_{eq} = \left(\frac{A_{Ra}}{370} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_{K}}{4810}\right) \times 370$$

$$Ra_{eq} = A_{II} + 1.429A_{Th} + 0.077A_{K}$$
(2.4)

Ra_{eq} : 라듐 등가 지수 (μBq/m³)

A_{Ra} : ²²⁶Ra의 방사능 농도(²³⁸U의 방사능 농도) (μBq/m³)

A_{Th} : ²³²Th의 방사능 농도 (μBq/m³)

A_k : ⁴⁰K의 방사능 농도 (μBq/m³)

III. 결과 및 고찰

1. 기기검출한계

기기검출한계(Instrumental Detection Limit: IDL)값을 산출하기 위해 가장 낮은 분석용 표준용액을 사용하여 7회 반복 측정을 설정하였고 측정한 각 결과의 재현성을 확인하는 변동계수(Variation of Coefficient: CV)도 함께 산출하였다. ICP-DRC-MS의 평균 기기검출한계(98% 신뢰 수준)와 변동계수를 다음 Table 4에서의 결과로 안정된상태를 확인해준다.

기기검출한계(IDL)는 분석용 표준용액을 7회 분석하여 구한 표준편차에 98% 신뢰 구간의 t (factor for confidence interval) 값인 3.14를 곱하여 산출하였다. 변동계수(CV) 는 7회 분석하여 구한 표준편차에 7회의 평균 측정값을 나누어 백분율(%)로 나타내 었으며 상대표준 편차(Relative Standard Deviation: RSD)라고도 한다(Jung-Sub Lee, 2008).

³⁹K, ²³⁸U, ²³²Th의 기기검출한계(IDL)는 각각 27.12 μg/L, 11.38 μg/L, 11.60 μg/L으로 측정하는 원소에 대해서 작은 농도 범위까지 수치 확인을 하였다. 또한, 5% 이하의 변동계수를 산출함으로써 평균 범위를 크게 벗어나지 않은 상황에서 실험이 진행되었다는 것을 확인할 수 있다.

Table 4 Instrumental Detection Limit(IDL) and Variation of Coefficient(CV) for ICP-DRC-MS (n=7)

Species	³⁹ K (μg/L)	²³⁸ U (ng/L)	²³² Th (ng/L)
IDL	27.12	11.38	11.60
CV(%)	2.24	1.38	1.48

2. 에어로졸 중 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th 의 측정 결과

2.1 에어로졸 중 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th 의 방사능 농도

본 연구에서는 국내 배경 지역인 제주도 고산지역 TSP 에어로졸 중의 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도를 산출한 후 제주지역 에어로졸 조성 특성을 분석하였다. 제주도 고산측정소에서 2013년 1월부터 4월까지 4개월간 총 29개의 TSP 에어로졸을 채집한 PTFE 필터 시료를 US EPA Method IO-3의 방법으로 화학처리를 진행하였고 ICP-DRC-MS를 이용하여 ³⁹K, ²³⁸U, ²³²Th의 농도를 측정하였다. 측정된 결과를 식(2.1), (2.2)를 통해서 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 농도(pg/m³)와 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도(μBq/m³)를 Table 5에서 7에 나타내었다.

Table 5에서 7에 보이는 바와 같이 TSP 에어로졸 채취기간 중 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도는 각각 1.341 ~ 46.483 μBq/m³ (mean: 14.188 ± 11.451 μBq/m³), 0.006 ~ 1.032 μBq/m³ (mean: 0.263 ± 0.226 μBq/m³), 0.001 ~ 2.579 μBq/m³ (mean: 0.226 ± 0.282 μBq/m³)의 범위로 관측되었다.

Table 5 The associated 40 K activity concentrations at the twenty-nine samples at Gosan in Jeju island, Korea

Sampling	³⁹ K		⁴⁰ K				
Date	ng/	m ³	pg/m ³		μВq	μBq/m³	
01/03 ^a	126.129	±4.185	14.757	±0.490	3.814	±0.127	
01/06 a	391.144	± 8.500	45.764	± 0.995	11.827	± 0.257	
01/09 ^a	301.624	±4.423	35.290	± 0.518	9.120	± 0.134	
$01/12^{b}$	835.719	±4.169	97.779	± 0.488	25.269	± 0.126	
01/21 °	318.198	± 2.888	37.229	± 0.338	9.621	± 0.087	
01/24 ^b	1072.644	± 10.836	125.499	±1.268	32.433	± 0.328	
01/27 a	414.054	± 5.326	48.444	± 0.623	12.520	±0.161	
02/14 ^a	645.793	± 3.807	75.558	± 0.445	19.527	±0.115	
02/17 ^a	44.341	± 2.310	5.188	± 0.270	1.341	± 0.070	
02/20 ^a	797.823	±9.569	93.345	±1.120	24.123	±0.289	
02/23 a	112.744	± 2.843	13.191	± 0.333	3.409	± 0.086	
02/26 a	199.288	± 3.012	23.317	± 0.352	6.026	± 0.091	
02/28 ^a	135.197	±3.718	15.818	± 0.435	4.088	± 0.112	
03/01 ^a	626.242	±7.824	73.270	± 0.915	18.935	± 0.237	
03/04 ^{b d}	1537.318	±21.724	179.866	± 2.542	46.483	± 0.657	
03/07 °	1262.931	± 11.757	147.763	± 1.376	38.187	± 0.355	
03/10 ^a	307.001	±4.354	35.919	± 0.509	9.283	± 0.132	
03/13 ^a	370.138	±5.570	43.306	± 0.652	11.192	± 0.168	
03/16 a	100.085	±2.631	11.710	± 0.308	3.026	± 0.080	
03/19 ^d	1027.978	± 10.215	120.273	± 1.195	31.083	± 0.309	
03/22 a	144.390	±3.893	16.894	± 0.455	4.366	± 0.118	
03/25 a	157.368	±4.072	18.412	± 0.476	4.758	± 0.123	
03/28 a	312.012	± 2.334	36.505	± 0.273	9.434	± 0.071	
03/31 a	229.696	± 3.012	26.874	± 0.352	6.945	± 0.091	
04/03 ^a	437.619	± 5.900	51.201	± 0.690	13.232	± 0.178	
04/06°	400.295	±6.989	46.834	± 0.818	12.104	± 0.211	
04/09 ^d	730.804	±7.074	85.504	± 0.828	22.097	± 0.214	
04/12 a	258.728	±6.680	30.271	± 0.782	7.823	± 0.202	
04/15 a	310.211	<u>±</u> 8.141	36.295	± 0.952	9.380	± 0.246	
Mean	469.225		54.899		14.188		
SD	378.723		44.311		11.451		
Max	1537.318		179.866		46.483		
Median	318.198		37.229		9.621		
Min	44.341		5.188	1	1.341		

a: Non-Event(NE), b: Haze(HA), c: Fog-Mist(FM), d: Asian Dust(AD)

Table 6 The associated $^{238}\mathrm{U}$ activity concentrations at the twenty-nine samples at Gosan in Jeju island, Korea

g 1: D:		²³⁸ U
Sampling Date	pg/m ³	μBq/m³
01/03 ^a	6.168 ±0.121	
01/06 ^a	20.085 ± 0.132	0.247 ± 0.002
01/09 ^a	15.392 ± 0.153	0.190 ± 0.002
01/12 ^b	46.729 ±0.510	0.575 ± 0.006
01/21 ^c	9.928 ± 0.214	0.122 ± 0.003
01/24 ^b	47.337 ± 0.135	0.583 ± 0.002
01/27 ^a	13.965 ± 0.067	0.172 ± 0.001
02/14 ^a	16.037 ± 0.539	0.197 ± 0.007
02/17 ^a	0.496 ± 0.028	0.006 ± 0.000
02/20 a	39.608 ± 0.542	0.488 ± 0.007
02/23 a	6.721 ± 0.129	0.083 ± 0.002
02/26 a	4.138 ±0.196	0.051 ± 0.002
02/28 a	8.938 ± 0.037	0.110 ± 0.000
03/01 ^a	11.494 ± 0.083	0.142 ± 0.001
03/04 ^{b d}	83.810 ±0.626	1.032 ± 0.008
03/07 ^c	65.022 ± 1.247	0.801 ± 0.015
03/10 ^a	13.020 ± 0.277	0.160 ± 0.003
03/13 ^a	12.866 ±0.190	0.158 ± 0.002
03/16 a	4.277 ± 0.048	0.053 ± 0.001
03/19 ^d	66.328 ±0.396	0.817 ± 0.005
03/22 a	6.483 ±0.149	0.080 ± 0.002
03/25 ^a	5.537 ± 0.149	0.068 ± 0.002
03/28 ^a	15.633 ± 0.057	0.192 ± 0.001
03/31 ^a	7.704 ± 0.153	
04/03 ^a	11.002 ± 0.172	
04/06 ^c	15.416 ± 0.237	
04/09 ^d	41.811 ± 0.529	
04/12 ^a	10.998 ± 0.136	
04/15 a	12.847 ±0.298	
Mean	21.372	0.263
SD	21.568	0.266
Max	83.810	1.032
Median	12.866	0.158
Min	0.496	0.006

^a: Non-Event(NE), ^b: Haze(HA), ^c: Fog-Mist(FM), ^d: Asian Dust(AD)

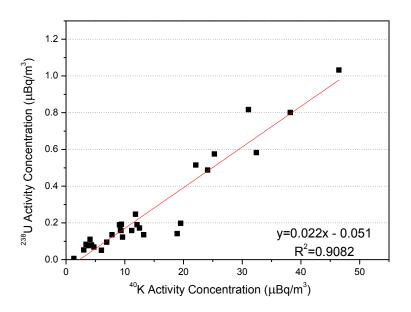
Table 7 The associated ²³²Th activity concentrations at the twenty-nine samples at Gosan in Jeju island, Korea

G 11 D	_	²³² Th
Sampling Date	pg/m ³	μBq/m³
01/03 ^a	8.211 ±0.21	
01/06 a	29.743 ± 0.35	0.121 ± 0.001
01/09 ^a	25.176 ± 0.21	7 0.102 ± 0.001
01/12 ^b	81.438 ±0.88	0.330 ± 0.004
01/21 ^c	9.344 ± 0.18	9 0.038 ± 0.001
01/24 ^b	83.110 ± 1.15	0.337 ± 0.005
01/27 a	24.905 ± 0.28	$4 0.101 \pm 0.001$
02/14 ^a	42.026 ± 0.19	4 0.170 ± 0.001
02/17 ^a	0.264 ± 0.03	8 0.001 ± 0.000
02/20 a	96.120 ± 0.94	0.390 ± 0.004
02/23 ^a	13.891 ± 0.29	0.056 ± 0.001
02/26 a	8.969 ± 0.22	$4 0.036 \pm 0.001$
02/28 a	30.975 ± 0.26	0.126 ± 0.001
03/01 ^a	19.523 ± 0.04	0.079 ± 0.000
03/04 ^{b d}	285.071 ± 2.57	9 1.156 ± 0.010
03/07 ^c	209.222 ± 2.05	0.848 ± 0.008
03/10 ^a	32.284 ± 0.63	0 0.131 ± 0.003
03/13 ^a	25.803 ± 0.18	4 0.105 ± 0.001
03/16 a	8.042 ± 0.06	0.033 ± 0.000
03/19 ^d	179.826 ± 1.53	7 0.729 ± 0.006
03/22 a	17.566 ± 0.44	9 0.071 ± 0.002
03/25 ^a	9.070 ± 0.22	0.037 ± 0.001
03/28 a	38.170 ± 0.65	0 0.155 ± 0.003
03/31 ^a	22.751 ± 0.42	0.092 ± 0.002
04/03 ^a	34.235 ± 0.66	0.139 ± 0.003
04/06°	25.153 ± 0.11	0 0.102 ± 0.000
04/09 ^d	175.217 ± 1.39	0.711 ± 0.006
04/12 a	36.369 ± 0.50	9 0.147 ± 0.002
04/15 a	45.044 ±0.38	8 0.183 ± 0.002
Mean	55.777	0.226
SD	69.592	0.282
Max	285.071	1.156
Median	29.743	0.121
Min	0.264	0.001

a: Non-Event(NE), b: Haze(HA), c: Fog-Mist(FM), d: Asian Dust(AD)

2.2 핵종 간의 상관관계

⁴⁰K의 방사능 농도를 기준으로 ²³⁸U과 ²³²Th의 방사능 농도의 비율은 Fig 10에 나타냈다. Fig 10에서 보이는 바와 같이 ⁴⁰K의 방사능 농도와 ²³⁸U의 방사능 농도 비율은 0.022(R²=0.9802), ⁴⁰K의 방사능 농도와 ²³²Th의 방사능 농도 비율은 0.022(R²=0.7939)으로 확인됐다. ²³⁸U의 방사능 농도와 ²³²Th의 방사능 농도의 비율은 Fig 11에 나타냈다. Fig 11에서 보이는 바와 같이 ²³⁸U의 방사능 농도와 ²³²Th의 방사능 농도의 비율은 Fig 11에 나타냈다. Fig 11에서 보이는 바와 같이 ²³⁸U의 방사능 농도와 ²³²Th의 방사능 농도 비율은 1.01(R²=0.9012)으로 확인됐다. 이러한 결과는 ²³⁸U과 ²³²Th의 비율은 UNSCEAR 2000에 보고된 세계 평균치와 근접한 값으로(UNSCEAR 2000) ²³⁸U과 ²³²Th의 근원은 주로 지각(crust)에서 발생된 것으로 판단된다. 반면에 ²³⁸U과 ²³²Th의 핵종과 ⁴⁰K의 상관비율이 낮은 것으로 보아 ⁴⁰K은 지각 이외의 다른 요인도 포함되는 것으로 판단된다.



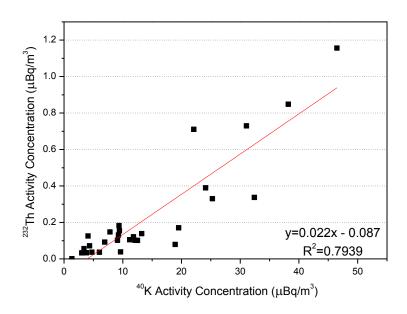


Fig 10. Correlation between 40 K, 238 Uand 232 Th in TSP aerosols.

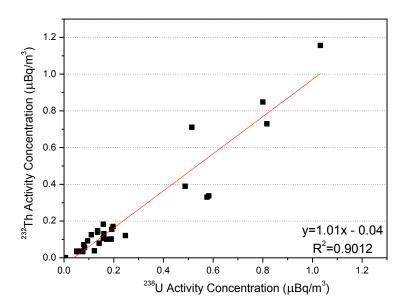


Fig 11. Correlation between ²³⁸U and ²³²Th in TSP aerosols.

2.3 대기 현상에 따른 분석

기상인자는 대기 에어로졸 조성에 중요한 역할을 하는 변수로 작용한다. 특히 황사, 연무, 박무, 안개 같은 기상현상은 대기에어로졸의 조성에 지대한 영향을 미치고 있어서 기상인자에 의한 영향을 집중적으로 검토해 볼 필요가 있다. 본 연구에서는 이러한 기상인자들이 대기 에어로졸의 미치는 영향과 변화를 조사하였다. 이를 위해채취 시기 시 고산지역 기상현상을 기상청 자료를 이용하여 조사하였고, 이를 비현상(non-event)일, 박무(fog-mist)일, 연무(haze)일, 황사(Asian Dust)일로 구분하였다. 제주도 고산지역에서 채집한 에어로졸을 기상현상에 따른 40 K, 238 U, 232 Th의 평균 방사능 농도를 Table 8에 나타내었다.

채집된 29개의 전체 TSP 에어로졸 중 비현상일은 총 21개이며 이 기간에 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 평균 방사능 농도는 각각 1.341 ~ 24.123 μBq/m³ (mean: 9.246 ± 5.963 μBq/m³), 0.006 ~ 0.488 μBq/m³ (mean: 0.143 ± 0.099 μBq/m³), 0.264 ~ 96.120 μBq/m³ (mean: 0.110 ± 0.081 μBq/m³) 범위로 관측되었다.

1월 21일, 3월 7일, 4월 6일에는 박무현상이 발생하였으며 이 기간에 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th 의 평균 방사능 농도는 각각 9.621 ~ 38.187 μBq/m³ (mean: 19.970 ± 15.824 μBq/m³), 0.122 ~ 0.801 μBq/m³ (mean: 0.371 ± 0.374 μBq/m³), 0.038 ~ 0.848 μBq/m³ (mean: 0.329 ± 0.451 μBq/m³) 범위로 비현상일일 보다 각각 2.16, 2.59, 2.99배 높게 관측되었다.

1월 12일, 1월 24일, 3월 4일에는 연무현상이 발생하였으며 이 기간에 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th 의 평균 방사능 농도는 각각 25.269 ~ 46.483 μBq/m³ (mean: 34.729 ± 10.792 μBq/m³), 0.575 ~ 1.032 μBq/m³ (mean: 0.730 ± 0.261 μBq/m³), 0.330 ~ 1.156 μBq/m³ (mean: 0.608 ± 0.475 μBq/m³) 범위로 비현상일일 보다 각각 3.75, 5.10, 5.53배 높게 관측되었다.

3월 4일, 3월 19일, 4월 9일에는 황사현상이 발생하였으며 이 기간에 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th 의 평균 방사능 농도는 22.097 ~ 46.483 μBq/m³ (mean: 33.221 ± 12.333 μBq/m³), 0.515 ~ 1.032 μBq/m³ (mean: 0.788 ± 0.260 μBq/m³), 0.711 ~ 1.156 μBq/m³ (mean: 0.865 ± 0.252 μBq/m³) 범위로 비현상일일 보다 각각 3.59, 5.51, 7.86배 높게 관측되었다.

29개 시료의 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 평균 방사능 농도는 황사일 및 연무일 때가 박무일 및 비현상일에 비해 약 3 ~7배 높게 나타났는데, 이것은 황사와 연무 발생일에는 박무일과 비현상일에 비하여 공기에 포함된 미세 먼지의 농도가 상대적으로 높기 때문인 것으로 평가되었다.

Table 8 Airborne ⁴⁰K, ²³⁸U and ²³²Th activity concentrations by atmospheric phenomenon in the Gosan location, Jeju Island

Examt	Ma	⁴⁰ K	²³⁸ U	²³² Th	
Event No		μBq/m³	μBq/m³	μBq/m³	
NE	21	9.246 ± 5.963	0.143 ± 0.099	0.110 ± 0.081	
FM	3	19.970 ± 15.824	0.371 ± 0.374	0.329 ± 0.451	
HA	3	34.729 ± 10.792	0.730 ± 0.261	0.608 ± 0.475	
AD	3	33.221 ± 12.333	0.788 ± 0.260	0.865 ± 0.252	

NE(Non-Event), HA(Haze), FM(Fog-Mist), AD(Asian Dust)

3. 유효선량 평가 결과

3.1 호흡으로 인한 연간 유효선량 평가

제주도 고산지역에서 2013년 1월부터 4월까지 4개월간 채취한 TSP 에어로졸 중 40 K, 238 U, 232 Th의 방사능 농도를 산출한 결과로부터 수년간 연구되어온 데이터를 조합하여 평균한 자료(Table 1, 2, 3)를 활용하여 호흡으로 인한 유효선량을 산정하고 평가하였다.

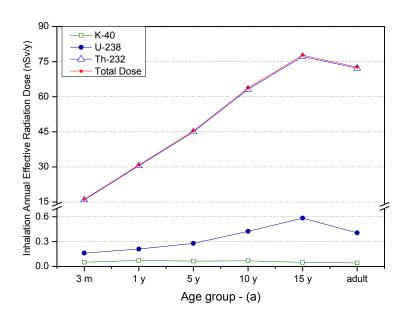
호흡으로 인한 연간 유효선량은 ICRP의 분류법에 따라 1개월, 1살, 5살, 10살, 15살과 성인의 6개 그룹 남성 및 여성으로 나누어 계산 및 평가되었다. 또한, 공기역학적 평균 활동 직경(AMAD)이 1 μm으로 결정된 섭취한 방사능 당 유효선량의 섭취유형(Table 3)에 따라서 F, M, S type으로 구분하고, 남성과 여성으로 구분하여 산출하였다. 4개월간 채취한 29개 TSP 에어로졸 시료에 대한 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도를 식 (2.3)을 이용하여 산출하였고 이를 근거로 예상한 연간 평균 유효선량을 Fig 13에서 15에 나타내었다.

F type으로 결정된 남성과 여성의 연간 유효선량을 Fig 12에서 보여준다. 연구 기간 중 남성이 F type으로 결정될 때 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 0.09 ~ 0.15 nSv/y, 0.16 ~ 0.58 nSv/y, 15.95 ~ 77.16 nSv/y 범위로 관측되었다. 여성이 F type으로 결정될 때 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 0.07 ~ 0.15 nSv/y, 0.16 ~ 0.42 nSv/y, 15.95 ~ 63.21 nSv/y 범위로 관측되었다. 호흡으로 인한 ⁴⁰K의 연간 유효선량은 M, S type을 고려하지 않으므로 나머지와 동일하다.

M type으로 결정된 남성과 여성의 연간 유효선량을 Fig 13에서 보여준다. 연구 기간 중 남성이 M type으로 결정될 때 ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 1.13 ~ 2.92

nSv/y, 5.76 ~ 30.22 nSv/y 범위로 관측되었다. 여성이 M type으로 결정될 때 ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 1.13 ~ 2.70 nSv/y, 5.76 ~ 24.31 nSv/y 범위로 관측되었다.

S type으로 결정된 남성과 여성의 연간 유효선량을 Fig 14에서 보여준다. 연구 기간 중 남성이 S type으로 결정될 때 ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 2.50 ~ 7.11 nSv/y, 3.74 ~ 16.40 nSv/y 범위로 관측되었다. 여성이 F type으로 결정될 때 ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 2.50 ~ 6.22 nSv/y, 3.74 ~ 13.45 nSv/y 범위로 관측되었다.



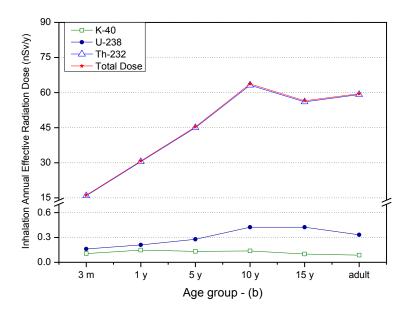
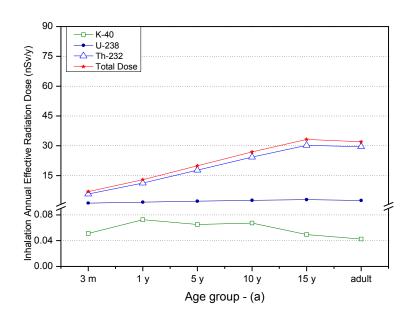


Fig 12. Annual effective dose to various age groups in Jeju island from inhalation 40 K, 238 U, and 232 Th in TSP aerosols : (a) F type Male, (b) F type Female.



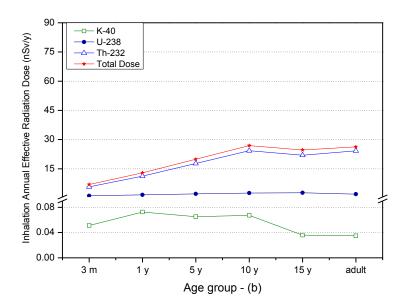
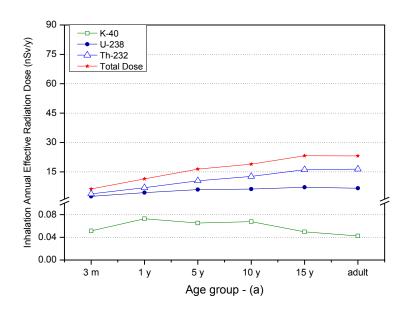


Fig 13. Annual effective dose to various age groups in Jeju island from inhalation 40 K, 238 U, and 232 Th in TSP aerosols : (a) M type Male, (b) M type Female.



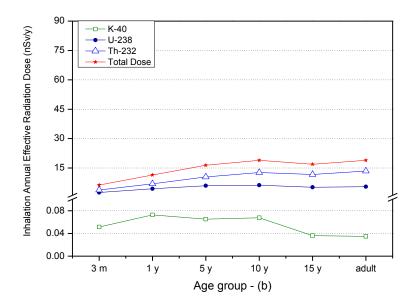
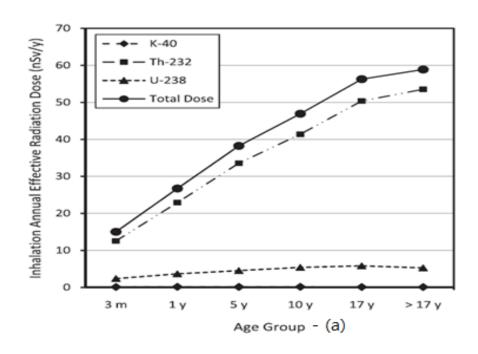


Fig 14. Annual effective dose to various age groups in Jeju island from inhalation 40 K, 238 U, and 232 Th in TSP aerosols : (a) S type Male, (b) S type Female.

본 연구결과의 평가를 위하여 2009년에 사우디아라비아(Jeddah city)에서 수행했던 유사 측정결과와 상호 비교하였다. Jeddah city 에서 산출된 자료는 2008년 12월부터 2009년 4월까지 24개의 PM_{2.5} 에어로졸 샘플에 대한 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 농도를 측정한 것이다(A. Zytoon, 2014). 산 용액(3 % HNO₃/5 % HCl)을 투입하고 초음파를 이용하여 69℃에서 3시간 동안 분해 절차를 걸친 EPA method 6020의 방법으로 진행하였다. 이과정을 거친 후 ICP-MS 기기를 이용하여 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도와 UNSCEAR 2000 보고서를 바탕으로 연간 유효 선량을 산출하였다. Jeddah city 의 연간 유효선량은 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th 방사능의 농도를 각각 F, M, S type으로 결정하여 남성에 대한 연간 평균 유효선량을 산출하였다. 본 연구에서도 Fig 12에서 14에 산출된 연간 평균 유효선량의 자료에 대해서도 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th 방사능의 농도를 각각 F, M, S type으로 결정한 남성에 대한 연간 평균 유효선량을 산출하였다. Jeddah city와 제주 고산 지역의 평균 연간 유효선량을 Fig 15에 나타내었다.

Jeddah city 에서 예상한 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th 의 연간 평균 남성 유효선량의 범위는 각각 0.09 ~ 0.15 nSv/y, 2.37 ~ 5.81 nSv/y, 12.55 ~ 53.52 nSv/y인 것으로 보고되었다. 본 연구에서 동일 핵종 및 피폭연령 군에 대하여 평가한 연간 평균 유효선량 범위는 각각 0.09 ~ 0.15 nSv/y, 1.13 ~ 2.92 nSv/y, 3.74 ~ 16.41 nSv/y 범위로 산출되었다. Jeddah city의 경우와 상호 비교 결과 ⁴⁰K 호흡 시의 연간 유효선량은 상호 비슷하였으나, ²³⁸U와 ²³²Th의 호흡 유효선량은 제주도에서 Jeddah 시보다 2~4배 정도 낮은 것으로 나타났다. 이는 양국간의 대기 환경 특성과 에어로졸 집진필터의 특성차이에 기인하는 것으로 생각된다.



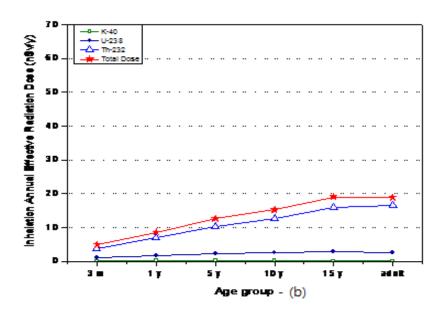


Fig 15. Intercomparison of the annual average effective dose between Jeddah city, Saudi Arabia with Jeju, Korea: (a) Jeddah city, Saudi Arabia (b) Jeju, Korea.

3.2 대기 현상에 따른 연간 유효선량 평가

대기 현상에 따른 유효선량의 변화추이를 평가하였다. 채취 시기 시 고산지역 대기 현상을 기상청 자료를 이용하여 조사하였고, 비현상(non-event)일, 박무(fog-mist)일, 연무(haze)일, 황사(Asian Dust)일로 구분하였다. TSP 에어로졸 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th으로 인한대기 현상에 따른 연간 유효선량을 Fig 16에 나타냈다. ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th 방사능 농도를 각각 F, M, S type으로 결정하여 성인 남성을 기준으로 평가하였다.

연구 기간 중 비현상일 때 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 0.01 ~ 0.15 nSv/y (mean: 0.06 nSv/y), 0.06 ~ 4.53 nSv/y (mean: 1.32 nSv/y), 0.08 ~ 28.27 nSv/y (mean: 7.97 nSv/y) 범위로 관측되었다.

박무 현상일 때 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 0.06 ~ 0.23 nSv/y (mean: 0.12 nSv/y), 1.13 ~ 7.44 nSv/y (mean: 3.44 nSv/y), 2.75 ~ 61.54 nSv/y (mean: 23.9 nSv/y) 범위로 비현상일일 보다 각각 2.0, 2.6, 3.0배 높게 관측되었다.

연무 현상일 때 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 0.15 ~ 0.28 nSv/y (mean: 0.21 nSv/y), 5.34 ~ 9.58 nSv/y (mean: 6.78 nSv/y), 23.96 ~ 83.86 nSv/y (mean: 44.09 nSv/y) 범위로 비현상일일 보다 각각 3.5, 5.1, 5.5배 높게 관측되었다.

황사 현상일 때 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 0.13 ~ 0.28 nSv/y (mean: 0.2 nSv/y), 4.78 ~ 9.58 nSv/y (mean: 7.32 nSv/y), 51.54 ~ 83.86 nSv/y (mena: 62.76 nSv/y) 범위로 비현상일일 보다 각각 3.3, 5.5, 7.9배 높게 관측되었다.

29개의 샘플 중 비현상일의 샘플 개수는 21개, 박무현상일의 샘플은 3개, 연무현상일의 샘플은 3개, 황사현상일의 샘플 개수는 3개였다. 그 중 3월 4일에는 황사와연무현상이 중복된 경우로 연무현상일 때 ²³⁸U, ²³²Th 최댓값이 황사일 때와 같은 수치를 보였다. 또한, 황사 및 연무 기상일 때가 박무 및 비현상일에 비해 연간 유효선량은 약 3~7배 이상 높게 나타났다



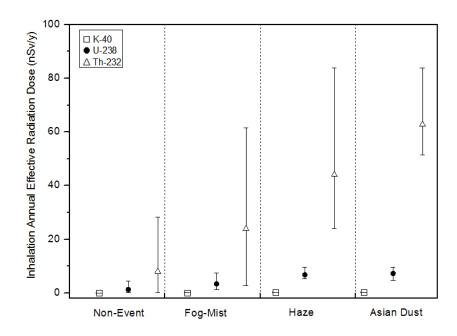


Fig 16. The annual average effective dose by atmospheric phenomenon in the Gosan location, Jeju island from in halation of 40 K, 238 U, and 232 Th (each vertical bar graph denotes the range of effective dose).

4. 라듐 등가 지수 산정

시료 내의 방사능 중 라듐 등가 지수(radium equivalent index. Ra_{eq})는 널리 사용되는 방사선 위험 지수이다. 이것은 226 Ra(238 U), 232 Th, 40 K의 서로 다른 농도를 함유하는 시료의 특정한 활동들을 비교하기 편리한 지표이다. 라듐 등가 지수는 226 Ra 의 10 Bq/kg에서 232 Th, 40 K이 각각 7 Bq/kg과 130 Bq/kg의 같은 감마 선량률을 생성한다는 가정아래에 정의된 것이다.

본 연구 기간에 채취된 29 개의 샘플들의 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도는 각각 1.341 ~ 46.483 μBq/m³ (mean: 14.188 ± 11.451 μBq/m³), 0.006 ~ 1.032 μBq/m³ (mean: 0.263 ± 0.226 μBq/m³), 0.001 ~ 2.579 μBq/m³ (mean: 0.226 ± 0.282 μBq/m³) 범위로 산출한 결과를 식 (2.4)를 이용하여 라듐 등가 지수(Ra_{eq})를 Table 9에 나타냈다. Table 9에서 보이는 바와 같이 0.111 ~ 6.263 μBq/m³ (mean: 1.679 ± 1.516 μBq/m³) 범위로 관측되었다. 또한, 2009년 사우디아라비아(Jeddah city)에서 수행한 라듐 등가 지수는 1.650 ~ 4.345 μBq/m³ (mean: 2.452 ± 2.306 μBq/m³) 범위로 확인되었다. 양국간의 라듐 등가 지수의 차이는 그 지역의 건조한 토양의 특성과 잦은 먼지 폭풍으로 인한 대기 환경에 차이가 있는 것으로 생각된다.

Table 9 The Radium equivalent index at the twenty-nine samples at Gosan in Jeju island, Korea

Sampling	$^{40}\mathrm{K}$	²³⁸ U	²³² Th	Ra _{eq}
Date	μBq/m³	μBq/m³	μBq/m³	μBq/m³
01/03 ^a	3.814±0.127	0.076 ± 0.001	0.033 ± 0.001	0.417 ± 0.012
01/06 a	11.827 ± 0.257	0.247 ± 0.002	0.121 ± 0.001	1.330 ± 0.023
01/09 a	9.120 ± 0.134	0.190 ± 0.002	0.102 ± 0.001	1.038 ± 0.013
$01/12^{b}$	25.269 ± 0.126	0.575 ± 0.006	0.330 ± 0.004	2.993 ± 0.021
01/21 °	9.621 ± 0.087	0.122 ± 0.003	0.038 ± 0.001	0.917 ± 0.010
01/24 ^b	32.433 ± 0.328	0.583 ± 0.002	0.337 ± 0.005	3.562 ± 0.034
01/27 a	12.520 ± 0.161	0.172 ± 0.001	0.101 ± 0.001	1.280 ± 0.015
02/14 ^a	19.527 ± 0.115	0.197 ± 0.007	0.170 ± 0.001	1.945 ± 0.017
02/17 ^a	1.341 ± 0.070	0.006 ± 0.000	0.001 ± 0.000	0.111 ± 0.006
02/20 a	24.123 ± 0.289	0.488 ± 0.007	0.390 ± 0.004	2.902 ± 0.034
02/23 a	3.409 ± 0.086	0.083 ± 0.002	0.056 ± 0.001	0.426 ± 0.010
02/26 a	6.026 ± 0.091	0.051 ± 0.002	0.036 ± 0.001	0.567 ± 0.011
$02/28^{a}$	4.088 ± 0.112	0.110 ± 0.000	0.126 ± 0.001	0.604 ± 0.011
03/01 ^a	18.935 ± 0.237	0.142 ± 0.001	0.079 ± 0.000	1.713 ± 0.019
03/04 ^{b d}	46.483 ± 0.657	1.032 ± 0.008	1.156 ± 0.010	6.263 ± 0.073
03/07 ^c	38.187 ± 0.355	0.801 ± 0.015	0.848 ± 0.008	4.953 ± 0.055
03/10 ^a	9.283 ± 0.132	0.160 ± 0.003	0.131 ± 0.003	1.062 ± 0.017
03/13 ^a	11.192 ±0.168	0.158 ± 0.002	0.105 ± 0.001	1.170 ± 0.016
03/16 a	3.026 ± 0.080	0.053 ± 0.001	0.033 ± 0.000	0.332 ± 0.007
03/19 ^d	31.083 ± 0.309	0.817 ± 0.005	0.729 ± 0.006	4.252 ± 0.038
03/22 a	4.366 ± 0.118	0.080 ± 0.002	0.071 ± 0.002	0.518 ± 0.014
03/25 a	4.758 ± 0.123	0.068 ± 0.002	0.037 ± 0.001	0.487 ± 0.013
03/28 a	9.434 ± 0.071	0.192 ± 0.001	0.155 ± 0.003	1.140 ± 0.010
03/31 a	6.945 ± 0.091	0.095 ± 0.002	0.092 ± 0.002	0.761 ± 0.011
04/03 a	13.232 ± 0.178	0.135 ± 0.002	0.139 ± 0.003	1.353 ± 0.020
04/06 ^c	12.104 ± 0.211	0.190 ± 0.003	0.102 ± 0.000	1.268 ± 0.020
04/09 ^d	22.097 ± 0.214	0.515 ± 0.007	0.711 ± 0.006	3.232 ± 0.031
04/12 a	7.823 ± 0.202	0.135 ± 0.002	0.147 ± 0.002	0.949 ± 0.020
04/15 a	9.380±0.246	0.158 ± 0.004	0.183 ± 0.002	1.141 ± 0.025
Mean	14.188	0.263	0.226	1.679
SD	11.451	0.266	0.282	1.516
Max	46.483	1.032	1.156	6.263
Median	9.621	0.158	0.121	1.141
Min	1.341	0.006	0.001	0.111

a: Non-Event(NE), b: Haze(HA), c: Fog-Mist(FM), d: Asian Dust(AD)

대기 현상에 따른 40 K, 238 U, 232 Th의 평균 방사능 농도를 식(2.4)을 이용하여 산출한 라듐 등가 지수 (Ra_{eq}) 를 Table 10에 나타내었다.

비현상일, 박무일, 연무일, 황사일의 라듐 등가 지수는 각각 0.111 ~ 2.902 μBq/m³ (mean: 1.012 ± 0.015 μBq/m³), 0.917 ~ 4.953 μBq/m³ (mean: 2.379 ±0.028 μBq/m³), 2.993 ~ 6.263 μBq/m³ (mean: 4.273 ± 0.043 μBq/m³), 3.232 ~ 6.263 μBq/m³ (mean: 4.582 ± 0.047 μBq/m³) 범위로 비현상일일 보다 각각 2.35, 4.22, 4.53배 높게 관측되었다.

Table 10 Airborne 40 K, 238 U and 232 Th activity concentrations and the Radium equivalent index by atmospheric phenomenon at Gosan location in Jeju Island

Event No	$^{40}\mathrm{K}$	²³⁸ U	²³² Th	Ra_{eq}	
Event	NO	μBq/m³	μBq/m³	μBq/m³	μBq/m³
NE	21	9.246 ± 5.963	0.143 ± 0.099	0.110 ± 0.081	1.012 ± 0.015
FM	3	19.970 ± 15.824	0.371 ± 0.374	0.329 ± 0.451	2.379 ± 0.028
HA	3	34.729 ± 10.792	0.730 ± 0.261	0.608 ± 0.475	4.273 ± 0.043
AD	3	33.221 ± 12.333	0.788 ± 0.260	0.865 ± 0.252	4.582 ± 0.047

NE(Non-Event), HA(Haze), FM(Fog-Mist), AD(Asian Dust)

5. 역 궤적 분석에 의한 대기 이동경로

제주도는 인구밀도가 낮고 자체 오염원이 거의 없는 청정지역이다. 그러나 제주도대기의 질은 외부에서 유입된 미세입자나 여러 오염물질의 영향을 받는 것으로 나타나고 있다. 따라서 측정 기간에 기단(air mass)의 이동 경로를 추적하면서 이러한장거리 이동 경로를 파악할 수 있다. 이를 위해 고산 지역의 TSP 에어로졸 분석 결과를 기초로 천연방사성핵종 ²³⁸U, ²³²Th, ⁴⁰K을 대상으로 역 궤적 분석(backward trajectory analysis)을 하여 연구 기간에 채취한 대기에어로졸 유입경로를 추적하였다.

본 연구 기간에 측정된 TSP 대기에어로졸 시료의 수는 총 29개이다. 이들 성분의 분석 데이터 중 기상현상에 따라 연무(Haze), 박무(Fog-mist), 황사(Asian-dust), 비현상 (Non-event)로 분류하여 시료의 채취 일을 기준으로 이 시기의 기단 이동궤적을 추적하여 이들의 유입 경로를 추적한 결과를 Fig 17에서 21에 나타내었다.

2013년 1월부터 4월 사이에 채취한 TSP 에어로졸 필터 내 에어로졸의 유입경로를 역 궤적 분석을 실시한 결과를 종합하여 Fig 17에 나타내었다. 본 연구 기간 중 기류의 이동경로에 따른 에어로졸의 조성 변화를 알아보기 위하여 기류의 유입경로를 3개의 구간으로 나누어 각 구간별로 그 조성을 비교하였다. 공기의 이동경로는 I 구간(중국대륙), II 구간(한반도), III 구간(북태평양 및 일본)으로 분류하였다. 3개의 구간으로 분류하여 구간별로 기류의 이동경로를 비교해 본 결과, 그 빈도는 I 구간 48.3%, II 구간 10.3%, III 구간 3.4%, 그 외에 중복 구간 37.9%로 연구기간 동안에 중국대륙으로부터 기류의 유입 빈도가 가장 많았던 것으로 조사되었다.

연구 기간에 측정된 TSP 에어로졸 시료 중 역궤적 분석을 실시한 결과, 기상현상으로 비현상일(Non-event)에 해당하는 자료를 Fig 18에 나타내었다. 2013년 1월 3일의자료로 5일간 역 궤적 분석 결과 중국의 영향을 받은 것으로 확인되었다. 동기간 중

에 측정된 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도는 각각 3.814, 0.076, 0.033 μBq/m³으로 확인되었다. 박무(Fog-mist)에 해당하는 자료를 Fig 19에 나타내었다. 2013년 1월 21일의자료로 5일간 역 궤적 분석 결과 중국의 낮은 고도에서 출발되며 바다수면의 위로이동되는 것으로 확인되었다. 동기간 중에 측정된 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도는 각각 9.621, 0.122, 0.038 μBq/m³으로 확인되었다. 연무(Haze)에 해당하는 자료를 Fig 20에 나타내었다. 2013년 1월 24일의 자료로 5일간 역 궤적 분석 결과 중국의 북쪽과남쪽을 회향하여 이동되는 것으로 확인되었다. 동기간 중에 측정된 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도는 각각 32.433, 0.583, 0.337 μBq/m³으로 확인되었다. 황사(Asian-dust)에 해당하는 자료를 Fig 21에 나타내었다. 2013년 3월 19일의 자료로 5일간 역궤적 분석결과 몽골 남쪽 지역과 중국을 통과하여 이동되는 것으로 확인되었다. 동기간 중에 측정된 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도는 각각 31.083, 0.817, 0.729 μBq/m³으로 확인되었다.

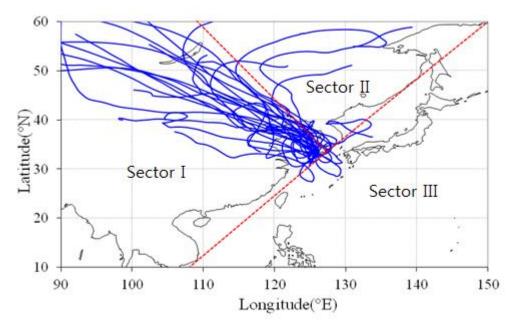


Fig 17. Five-day backward trajectory ending between 3 January and 15 April 2013.

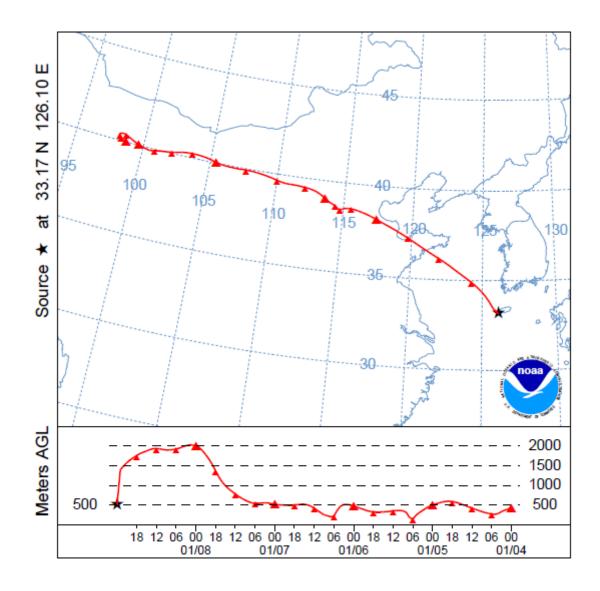


Fig 18. Five-day backward trajectory for non-event case ending at 9 January 2013.

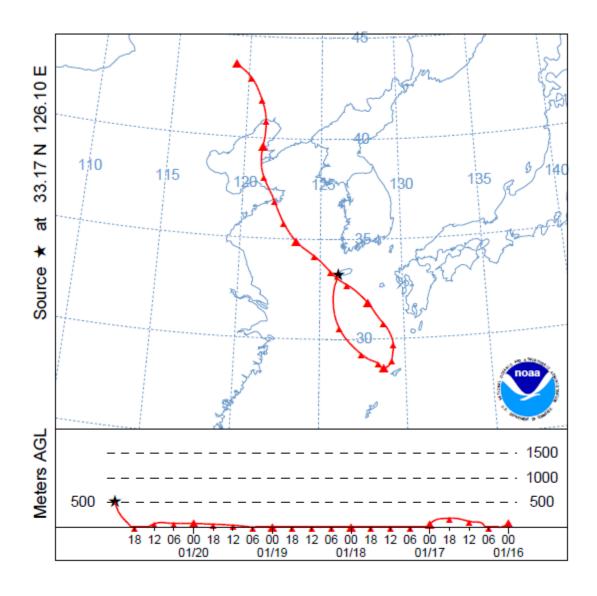


Fig 19. Five-day backward trajectory for fog-mist case ending at 21 January 2013.

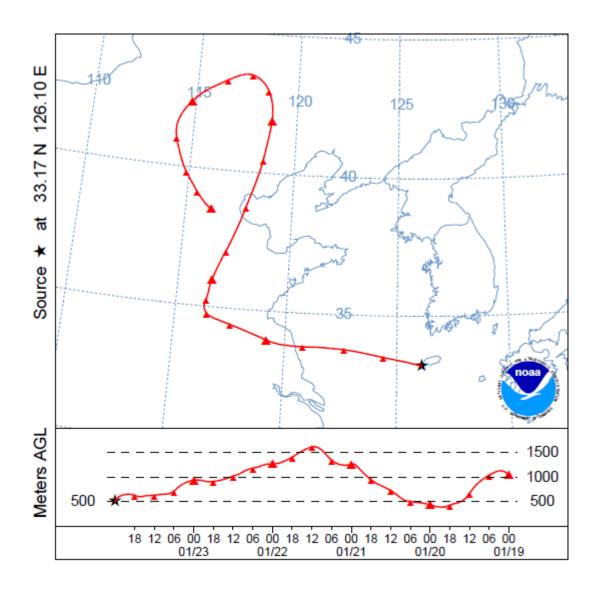


Fig 20. Five-day backward trajectory for haze case ending at 21 January 2013.

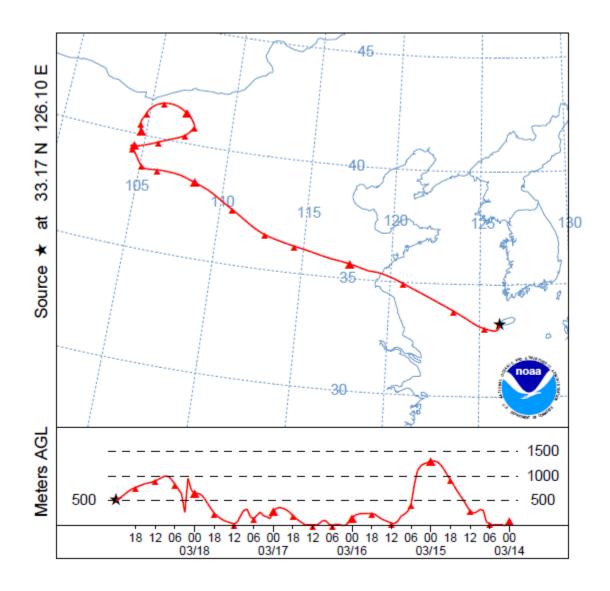


Fig 21. Five-day backward trajectory for Asian-dust case ending at 19 March 2013.

IV. 결 론

본 연구에서는 오염원의 방해가 적고, 인구밀도가 낮은 제주도의 배경지역(고산)에서 2013년 1월에서 2013년 4월까지 채집된 에어로졸 시료 중의 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도를 ICP-DRC-MS를 이용하여 측정하였다.

[1] 연구 기간 중 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도는 각각 1.341 ~ 46.483 μBq/m³ (mean: 14.188 ± 11.451 μBq/m³), 0.006 ~ 1.032 μBq/m³ (mean: 0.263 ± 0.226 μBq/m³), 0.001 ~ 2.579 μBq/m³ (mean: 0.226 ± 0.282 μBq/m³) 범위로 관측되었다. 국제연합에서 2000년도에 보고한 전세계 대기 입자 중 ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도 평균치가 각각 농도 기준치가 각각 1.0, 0.5 μBq/m³ 임을 고려할 때, 본 연구에서 측정한 제주도 고산지역 대기 입자중의 해당 농도는 국제연합에서 제시한 평균치보다 낮은 농도 범위를 보였다.

특정한 대기 현상일 때를 구분하기 위하여 TSP 에어로졸이 채취된 날을 기준으로 고산지역 기상현상을 기상청 자료를 이용하여 황사(Asian Dust), 연무(haze), 박무(fogmist), 비현상일(non-event)로 구분하였다. 그 결과, 비현상일일 때 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도는 각각 1.341 ~ 24.123 μBq/m³ (mean: 9.246 ± 5.963 μBq/m³), 0.006 ~ 0.488 μBq/m³ (mean: 0.143 ± 0.099 μBq/m³), 0.264 ~ 96.120 μBq/m³ (mean: 0.110 ± 0.081 μBq/m³) 범위로 나타났다. 박무 현상일일 때 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도는 각각 9.621 ~ 38.187 μBq/m³ (mean: 19.970 ± 15.824 μBq/m³), 0.122 ~ 0.801 μBq/m³ (mean: 0.371 ± 0.374 μBq/m³), 0.038 ~ 0.848 μBq/m³ (mean: 0.329 ± 0.451 μBq/m³) 범위로 비현상일일 보다 각각 2.16, 2.59, 2.99배 높게 나타났다. 연무 현상일일 때 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도는 각각 25.269 ~ 46.483 μBq/m³ (mean: 34.729 ± 10.792 μBq/m³), 0.575 ~ 1.032 μBq/m³ (mean: 0.730 ± 0.261 μBq/m³), 0.330 ~ 1.156 μBq/m³ (mean: 0.608 ± 0.475 μBq/m³) 범위로 비현상일일 보다 각각 3.75, 5.10, 5.53배 높게 나타났

다. 황사 현상일일 때 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 방사능 농도는 22.097 ~ 46.483 μBq/m³ (mean: 33.221 ± 12.333 μBq/m³), 0.515 ~ 1.032 μBq/m³ (mean: 0.788 ± 0.260 μBq/m³), 0.711 ~ 1.156 μBq/m³ (mean: 0.865 ± 0.252 μBq/m³) 범위로 비현상일일 보다 각각 3.59, 5.51, 7.86배 높게 나타났다. 29개 시료의 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 평균 방사능 농도는 황사일 및 연무일 때가 박무일 및 비현상일에 비해 약 3 ~7배 높게 나타났는데, 이것은 황사와 연무 발생일에는 박무일과 비현상일에 비하여 공기에 포함된 미세 먼지의 농도가 상대적으로 높기 때문인 것으로 평가되었다.

²³⁸U과 ²³²Th의 비율은 UNSCEAR 2000에 보고된 세계 평균치와 근접한 값으로 (UNSCEAR 2000) ²³⁸U과 ²³²Th의 근원은 주로 지각(crust)에서 발생된 것으로 판단된다. 반면에 ²³⁸U과 ²³²Th의 핵종과 ⁴⁰K의 상관비율이 낮은 것으로 보아 ⁴⁰K은 지각 이외의 다른 요인도 포함되는 것으로 판단된다.

[2] 제주도 고산지역 에어로졸 내 ⁴⁰K, ²³⁸U 및 ²³²Th 방사능 농도의 호흡으로 인한 연간 유효선량을 남,여 연령군별로 평가하였다. 그 결과, 연구 기간 중 남성이 F type으로 결정될 때 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 0.09 ~ 0.15 nSv/y, 0.16 ~ 0.58 nSv/y, 15.95 ~ 77.16 nSv/y 범위를 나타났다. 여성이 F type으로 결정될 때 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 0.07 ~ 0.15 nSv/y, 0.16 ~ 0.42 nSv/y, 15.95 ~ 63.21 nSv/y 범위를 나타냈다. 남성이 M type으로 결정될 때 ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 1.13 ~ 2.92 nSv/y, 5.76 ~ 30.22 nSv/y 범위를 나타냈다. 여성이 M type으로 결정될 때 ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 1.13 ~ 2.70 nSv/y, 5.76 ~ 24.31 nSv/y 범위를 나타났다. 남성이 S type으로 결정될 때 ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 2.50 ~ 7.11 nSv/y, 3.74 ~ 16.40 nSv/y 범위를 나타났다. 여성이 F type으로 결정될 때 ²³⁸U, ²³²Th의 연간 유효선량은 각각 2.50 ~ 6.22 nSv/y, 3.74 ~ 13.45 nSv/y 범위를 나타냈다.

호흡으로 인한 연간 유효선량의 주요 핵종은 ²³²Th으로 확인되었다. ²³²Th은 전체 유효선량의 98.4~99.1% 영향으로 나타났고, 반면에 ⁴⁰K은 전체 유효선량에 낮게 영 향을 받는 것으로 확인되었다.

사우디아라비아의 Jeddah city 에서 산출된 결과로 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 연간 평균 유효 선량은 각각 0.09 ~ 0.15 nSv/y, 2.37 ~ 5.81 nSv/y, 12.55 ~ 53.52 nSv/y 범위로 나타났다. 본 연구에서 산출된 결과로 ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th의 연간 평균 유효선량은 각각 0.09 ~ 0.15 nSv/y, 1.13 ~ 2.92 nSv/y, 3.74 ~ 16.41 nSv/y 범위로 나타났다. ⁴⁰K 의 연간 평균 유효 선량은 비슷하였으나 ²³⁸U, ²³²Th의 연간 평균 유효선량은 사우디아라비아의 Jeddah 시에서 제주도 고산지역에서 보다 약 2~3배 더 높았다.

호흡으로 인한 연간 유효선량을 평가하기 위하여 70년간 연구되어온 연령별 호흡률, 실내와 실외 거주인자 자료는 1년을 평균하여 나타낸 인자들이다. 본 연구에서의 TSP 에어로졸 채취 기간은 한겨울과 초봄이기 때문에 1년을 평균하여 나타낸 인자(호흡률, 실내와 실외 거주)들이 각각의 계절마다 다르게 나타날 수 있다. 나아가세분화된 인자들의 조사가 필요하며, 이러한 결과로 인한 유효선량을 평가하게 되면다소 차이가 있을 것으로 예상된다.

[3] 대기 입자들의 이동 경로를 확인하기 위하여 미국 해양대기국(NOAA)에서 제공하는 HYSPLIT4 모델을 이용하여 역 궤적 분석을 하였다. 연구 기간 중 기류의 이동경로에 따른 에어로졸의 조성 변화를 알아보기 위하여 기류의 유입경로를 3개의구간으로 나누어 구간별로 그 조성을 비교하였다. 3개의 구간; I구간(중국대륙), II구간(한반도), III구간(북태평양 및 일본)으로 분류하여 구간별로 기류의 이동 경로를 비교해 본 결과, 그 빈도는 I 구간 48.3 %, II 구간 10.3 %, III 구간 3.4 %, 그 외에 중복구간 37.9%로 연구기간에 중국으로부터 기류의 유입 빈도가 가장 높았던 것으로 평가되었다.

제주 지역은 오염원의 방해가 적고, 인구밀도가 낮아 국내 배경 지역으로도 손꼽히는 장소이다. 본 연구의 결과는 최근 점차 심화하고 있는 중국발 황사 및 미세먼

지가 한반도에 미치는 영향에 대한 기초자료로 사용될 수 있음을 보여주었다. 최근에는 기상관측 결과 황사 또는 미세먼지 발생일이 예전과는 달리 봄철뿐만 아니라가을철에도 빈번하게 발생되고 있으므로 연중 여러 곳에서 장기적으로 다수의 TSP에어로졸을 채취하여 기상 및 대기질의 변화영향에 따른 에어로졸 내 방사성 핵종의 농도 및 이의 호흡으로 인한 유효선량 평가를 수행하여야 할 것이다.

참고문헌

- A.Sroor, S.Y. Afifi, A.S. Abdel-Haleem, A.B.Salman, M.Abdel-Sammad. 2002. Environmental pollutant isotope measurements and natural radioactivity assessment for North Tushki area, south western desert, Egypt. Applied Radiation and Isotopes 57, 427-43
- Barry J. Huebert, Timothy Bates, Philip B. Russell, Guangyu Shi, Young Joon Kim, Kimitaka Kawamura, Greg Carmichael, and Teruyuki Nakajima, 2003. An overview of ACE-Asia: Strategies for quantifying the relationships between Asian aerosols and their climatic impacts.

 Journal of Geophysical Research Vol. 108, No. D23, 8633, doi: 10.1029/2003JD003550
- H.A. Al-Trabulsy, A.E.M. Khater, F.I. Habbani., 2011. Radioactivity levels and radiological hazard indices at the Saudi coastline of the Gulf of Aqaba. Radiation Physics and Chemistry 80, 343-348.
- Huda Al-Sulaiti, TabassumNasir, K.S.AlMugren, N.Alkhomashi, N.Al-Dahan, M. Al-Dosari,
 D.A.Bradley, S.Bukhari, M.Matthews, P.H.Regan, T.Santawamaitre, D. Malain, A.Habib,
 2012. Determination of the natural radioactivity levels in north west of Dukhan, Qatar using high-resolution gamma-ray spectrometry. Applied Radiation and Isotopes 70, 1344-1350.
- Hwa-Suk Kang. 2008. Long-term variation of sulfate and nitrate concentrations of TSP aerosols in Gosan area, Jeju Island, Jeju National University master thesis.

- ICRP, The International Commission on Radiological Protection, 2002. Basic Anatomical and physiological data for use in radiological protection: reference values. ICRP publication 89. Ann. ICRP 32 (3-4).
- ICRP, The International Commission on Radiological Protection, 2012. Compendium of dose coefficients based on ICRP publication 60. ICRP publication 119. Ann. ICRP 41
- Jung-Sub Lee, Young-Hee Kim, Jae-Sung Park, Jung-Hi Lee, Tae-Hyo Im, Hak-Gu Kang, Eun-Jin Hong, Jae-Seok Jo, Gi-Taeg Jeong, Jun-Seok Cha, Kwang-Yong Jung. 2008.
 Establishment of analytical method for blood and urine using ICP-MS(I). National Institute of Environmental Research.
- Kazuki Iwaoka, Hiroyuki Tabe, Hidenori Yonehara, 2014. Activity concentration of natural radioactive nuclides in nonmetallic industrial raw materials in Japan. Journal of Environmental Radioactivity 137, 130-136.
- Michael Berglund and Michael E. Wieser, 2011. Isotopic compositions of the elements 2009(IUPAC Technical Report). Pure and Applied Chemistry 83(2), 397-410.
- Mohamed A. Zytoon, Hani M. Aburas, Mohammed I. Abdulsalam., 2014. Determination of ⁴⁰K, ²³²Th and ²³⁸U activity concentrations in ambient PM_{2.5} aerosols and the associated inhalation effective dose to the public in Jeddah City, Saudi Arabia. Journal of Environmental Radioactivity 129, 148-156
- R Mehra, Kbadhan, R G Sonkawade, S Kansal & S Singh, 2010. Analysis of terrestrial natural radiounclides in soil samples and assessment of average effective dose. Indian Journal of Pure & Applied Physics Vol. 48, 805-808



- S Mohapatra, S K Sahoo, J S Dubey, A C Patra, V K Thakur, S K Tripathy, D Vidvasagar, S V Godbole, P M Ravi, R M Tripathi, 2015. On the radiological assessment of natural and fallout radioactivity in a natural high background radiation area at Odisha, India. Journal Radional Nucl Chem 303.2081-2092, doi: 10.1007/s10967-014-3814-6.
- Teruyuki Nakajima, Soon-Chang Yoon, Veerabhadran Ramanathan, Guang-Yu Shi, Toshihiko Takemura, Akiko Higurashi, Tamio Takamura, Kazuma Aoki, Byung-Ju Sohn, Sang-Woo Kim, Haruo Tsuruta, Nobuo Sugimoto, Atsushi Shimizu, Hiroshi Tanimoto, Yousuke Sawa, Neng-Huei Lin, Chung-Te Lee, Daisuke Goto, and Nick Schutgens, 2007. Overview of the Atmospheric Brown Cloud East Asian Regional Experiment 2005 and a study of the aerosol direct radiative forcing in east Asia. Journal of Geophysical Research Vol. 112, D24591, doi: 10.1029/2007JD009009.
- UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1982. In Sources effects and risks of ionizing radiation. Report to the General Assembly, with annexes, United Nations, New York.
- UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation, 2000. Report to the General Assembly. In: Sources and Effects of Ionizing Radiation, vol. I. New York.
- Veiga, R., Sanches, N., Anjos, R.M., Macario, K., Bastos, J., Iguatemy, M., Aguiar, J.G., Santos, A.M.A., Mosquera, B., Carvalho, C., BaptistaFilho, M., Umisedo, N.K., 2006. Measurements of natural radioactivity in Brazilian beach sands. Radiation Measurements 41, 189–196.
- Young- Sin Chun, Ju-Yeon Lim, Byoung-Cheol Choi. 2003. The features of aerosol in Seoul by Asian Dust and Haze during springtime from 1998 to 2002. Korean Meteorological Society 39, 4, 459-474



감사의 글

파란 하늘과 넓은 바다를 바라보며 모든 것이 새로웠던 지난 제주도에서의 추억을 기억하며, 이제 출발선에 서 있는 저의 마음을 졸업논문의 한 곳에 감사의 글로 표현하고자 합니다.

먼저, 저의 이야기를 끝까지 들어주시고 아낌없는 조언과 미래의 방향을 지도해주신 박재우 교수님의 은혜에 고개 숙여 감사 드립니다. 그리고 바쁜 와중에도 논문에 대해 조언 해주시고 꼼꼼하게 검토해 주신 장시영 박사님께도 진심으로 감사 드립니다. 또한, 화학처리를 하기 위한 화학적 기초지식들과 실험과정들을 바로 잡아주시고 잦은 실수에도 오히려 꼼꼼히 가르쳐 주셨던 한충훈 박사님께도 진심으로 감사 드립니다.

지난 학부, 대학원 과정 동안 졸업하신 RI 실험실 선배님들의 조언과 격려에 감사의 마음을 전합니다. 그리고 우리 동갑내기 3인방 정민아, 연현아 함께 했던 기억들 잊지 말고 다시 만나면 변하지 않은 모습으로 이때를 추억하자. 우리 후배들도 열심히 해서 하고 푼바 모두 이루길 바란다. 대학생활의 전부인 에너지공학과 동기들과학과를 위해 매사에 열중하는 조교 경호형과 용현이형에게도 감사의 마음을 전합니다.

마지막으로 항상 옆에서 힘이 되게 응원해준 사랑하는 애리와 지금까지 저를 믿어 지켜봐주시고 제 의견을 존중해주신 어머니와 큰누나, 작은누나 그리고 하늘에 계신 아버지께 감사의 마음을 담아 이 논문을 바치겠습니다. 사랑합니다.