Printed in the Republic of Korea
ANALYTICAL SCIENCE & TECHNOLOGY
Vol. 25, No. 2, 146-151, 2012
http://dx.doi.org/10.5806/AST.2012.25.2.146

액체섬광계수기를 이용한 지하수 내 우라늄 동위원소 측정법에 관한 연구

조수영★ · 송경선 · 이길용 · 윤윤열 · 김원백 · 고경석
한국지질자원연구원
(2012. 3. 21. 접수, 2012. 4. 9. 수정, 2012. 4. 9. 승인)

A study of activity ratios of uranium isotope in the groundwater using liquid scintillation counter

Sooyoung Cho★, Kyungsun Song, Kil Yong Lee, Yoon Yeol Yoon, Wonbaek Kim and Kyungsok Ko
Geologic Environment Division, Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources(KIGAM)
(Received March 21, 2012; Revised April 9, 2012; Accepted April 9, 2012)

요 약: 액체섬광계수기를 이용한 지하수 내 우라늄 동위원소의 최적 측정방법에 대한 연구를 수행하였다. 용매추출법을 이용해 우라늄을 추출하였고, 시료량과 pH에 따른 추출효율을 조사하였다. 우라늄 추출효율에 미치는 영향을 조사하기 위해 표준용액을 사용하여 100 mL~1 L 범위에서 시료량을 변화 시켰으며 pH는 0.5~10 범위에서 측정하였다. 실험결과 우라늄의 추출효율은 pH에 매우 민감한 것으로 나타났으며 pH 2 에서 최고치를 나타냈다. 이에 반해 시료량은 추출효율에 큰 영향을 미치지 않는 것으로 나타났다. 우라늄 표준시료를 이용한 실험 결과 추출효율은 95.93±0.77% 이었고, 계측시간 5시간을 기준으로 한 우라늄의 검출한계는 0.018 Bq/L 이었다. 본 연구결과로부터 지하수에 함유된 우라늄의 최적 추출 및 측정법을 확립할 수 있었고 본 방법의 검증을 위해서 지하수 중 우라늄의 분석에 일반적으로 사용되는 ICP-MS 측정결과와의 비교분석도 함께 수행하였다. 본 연구에서 개발된 분석법을 대전 주변 지역 네 곳의 지하수를 대상으로 우라늄 함량 및 동위원소 비의 측정에 적용한 결과 우라늄의 농도는 0.59~6.69 Bq/L 그리고 $^{234}U/^{238}U$의 방사성 비는 0.88~1.40 범위로 나타내었다.

Abstract: An analytical method was developed for the measurement of uranium isotope in ground water using the liquid scintillation counting technique. A LKB Wallac Quantulus 1220 liquid scintillation counter (LSC) equipped with pulse shape analyzer (PSA) and a solvent extraction method were used for the measurement of uranium isotope in ground water samples. The effect of solution volume on the extraction efficiency was evaluated for 100 to 1000 mL solutions using a NIST standard reference material (NIST SRM 4321C). The effect of groundwater pH on the extraction efficiency was also investigated for pH ranging from 0.5 to 10. It was found that the extraction efficiency had a strong dependence on pH showing a maximum at pH 2. In contrast, the effect of groundwater volume on the extraction efficiency was negligible in the range investigated. According to the method, the extraction efficiency of uranium isotopes was near 96% and the lower detection

★ Corresponding author
Phone : +82-(0)42-868-3421 Fax : +82-(0)42-868-3662
E-mail : sycho@kigam.re.kr

www.kci.go.kr

limit for uranium was 0.018 Bq/L with the counting time of 300 min. The result of this study was also verified by the conventional ICP-MS measurement. It is demonstrated that the suggested method is valuable to the determination of the optimum extraction and measurement conditions for uranium in ground water. The method was successfully applied to the ground water at four locations near the Daejeon province. It was found that the uranium content and the isotopic ratio of $^{234}U/^{238}U$ at the locations ranged 0.59~6.69 Bq/L and 0.72~1.40, respectively.

Key words: uranium isotope, liquid scintillation counter, solvent extraction, groundwater

1. 서 론

방사성 물질은 원자핵이 붕괴하면서 방사선을 방출하는 물질로 노출정도에 따라 인체에 심각한 문제를 야기한다.[1] 지하수내에서는 우라늄(uranium), 라돈(radon), 라듐(radium) 등의 방사선 물질이 검출되고 있으며, 세계보건기구(WHO)에서는 음용수에 대한 규제치를 제시하고 있다. 국내에서도 대전 지역 지하수내의 우라늄 검출 연구 결과가 보고[2] 되면서, 최근 들어 이들 방사성물질에 대한 사회적인 관심과 위해성에 대한 연구가 활발하게 진행되고 있다.[3-5] 이들 방사성 물질 중에서도 우라늄은 매우 긴 반감기를 가지며, 반응성과 이동성이 높아 지하수에서 다양한 결합 형태로 넓게 분포되어 존재하는 것으로 알려져 있다.[6] 더욱이, 라돈이나 라듐과는 달리 우라늄이 인체에 유입되는 경로는 지하수의 음용에 따른 것으로 보고되고 있다.[7]

천연우라늄(U)의 동위원소별 존재비는 ^{238}U은 99.275%, ^{235}U는 0.72%, ^{234}U는 0.005%로 알려져 있다. 한편 방사능비의 경우를 보면 $^{235}U/^{238}U$는 0.046 $^{235}U/^{234}U$는 0.05로 이론적으로는 물중의 ^{235}U의 방사능은 ^{238}U과 ^{234}U에 비해 무시할 만한 수준이라 할 수 있으며 ^{235}U 계열 붕괴 과정 산물은 ^{238}U 계열에 비해 그 선량학적 영향을 무시할 정도인 것으로 알려져 왔다.[8] 한편 ^{238}U와 ^{234}U의 방사평형(secular equilibrium)은 100만년 이상 된 암석과 광물에서 일어나며 ^{238}U의 붕괴계열은 *Fig.* 1과 같다.[9] 방사평형에 도달했을 경우, $^{234}U/^{238}U$의 방사능비는 1이 되지만 물속에서는 물과 암석의 반응에 의하여 이 방사능비가 달라진다고 보고되고 있다.[10-11] 모핵종과 딸핵종의 농도는 반감기 이외에 이동성에서도 차이를 보이기 때문에 특정지역에서의 우라늄 발생원인과 이동기작에 대한 검토를 위해서는 각각의 핵종에 대한 정량이 이루어져야 할 것이다. 그럼에도 불구하고 현재 국내에서 진행되는 지하수내의 우라늄 유출에 관한 대부분의 분석은 ICP-MS을 이용한 ^{238}U 동위원소의 정량에만 그치고 있는 실정이다.

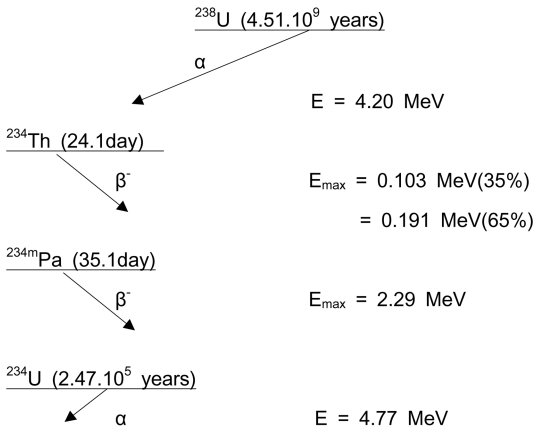

Fig. 1. A part of the decay scheme of ^{238}U.

지하수 중의 우라늄 측정에는 여러 방법이 사용되고 있지만 그 대표적인 방법으로는 fluorometric 방법,[12] 방사화학적 방법, ICP-MS 방법과 액체섬광계수법(liquid scintillation counter; LSC) 등을 들 수 있다. 이중 fluorometric 방법은 동위원소 선별능력이 없으며, 분석자의 기술에 대한 의존도가 크고 실험실간의 재현성이 떨어지는 등의 제한적인 요소들이 있다. 가장 일반적으로 사용되는 ICP-MS는 시료전처리가 간편하고 검출감도가 우수한 장점이 있지만 $^{234}U/^{238}U$ 방사능비를 측정하기 위해서는 고분해능 ICP-MS가 필요하다. 또한 우라늄 동위원소 분리 및 알파선계측을 이용하는 방사화학적 방법은 정확도와 정밀도면에서 만족스러운 것으로 알려져 있으나 그 특성상 전문성과 많은 노력이 요구되며 재현성이 부족하여 추적자를 사용해야 하는 번거로움이 따른다. 이와 같이, 방사화학적 방법을 제외한 모든 우라늄 측정법은 동위원소의 비율에 대한 정보를 제공하지 못하며 기존의 방사화학적 방법들은분석시간과 노력이 많이 요구되므로 이에 대한 대안이 필요하다.[13] 이러한 문제점이 보완된 LSC법은 환경방

www.kci.go.kr

사성동위원소 측정 상 신속성, 경제성 및 정량성을 확보하고 있는 것으로 알려져 있음에도 불구하고 국내에서는 아직 적용된 예가 없다.

따라서 본 연구에서는 LSC법을 이용하여 지하수에 존재하는 $^{234}U/^{238}U$의 방사능비를 측정하고 이때 지하수 시료와 추출용매의 비율 및 pH 조건이 우라늄의 추출효율에 미치는 영향을 조사함으로써 최적 측정조건을 도출하고자 하였다. 또한 개발된 측정방법을 우라늄의 함량이 10-300 μg/L인 대전지역 일부 지하수의 우라늄 동위원소 분석에 적용함으로써 본 방법의 타당성을 검증하고자 하였다.

2. 실 험

2.1. 실험장치 및 재료

우라늄 동위원소의 방사능 측정은 한국지질자원연구원의 액체섬광계수기(Perkin Elmer사의 Wallac 1220 Quantulus™모델)를 이용하여 수행하였다. 이 장비(ultra low level LSC; ULL-LSC)는 극저준위의 알파, 베타핵종의 측정에 효과적인 것으로 알려져 있으며, 다양한 환경방사능의 응용분야에 대한 측정조건의 최적화가 가능하다. 또한, 알파/베타 핵종을 동시에 측정할 수 있는 파형분석(Pulse Shape Analysis : PSA) 기능을 가지고 있어 알파선과 베타선에 의해 생성된 펄스의 형태 차이를 이용하여 이들을 분리할 수 있으므로 한번 측정을 통하여 지하수내 알파방출 핵종과 베타방출 핵종을 동시에 측정할 수 있다. 또한 백그라운드 계수율이 매우 낮고 불순물에 의한 소광현상(quenching effect)은 표준소광인자(standard quenching parameter; SQP)를 사용하여 보정할 수 있다.

지하수 중 우라늄의 추출을 위해 사용한 용매는 우라늄의 선택적 추출에 효과적인 것으로 잘 알려져 있는 섬광용액을 사용하였다.[14] 이 섬광용액은 섬광급 톨루엔 1 L에 나프탈렌 35 g, PBBO (2-(4-biphenylyl)-6-phenyl-benzoxazole) 4 g, HDEHP (bis-2-etilhexyl-orto-phosphoric acid) 50 g을 혼합하여 사용하였다. 우라늄의 추출효율과 계측효율의 측정은 우라늄 표준물질인 NIST SRM4321C(natural uranium, 242 Bq/g ^{238}U, 11.4Bq/g ^{235}U, 233.1Bq/g ^{234}U)를 사용하여 수행하였다.

2.2. 실험

2.2.1. PSA 준위설정

1) ^{241}Am과 $^{90}Sr/^{90}Y$ 이용법

^{241}Am과 $^{90}Sr/^{90}Y$ 표준선원용액을 추적자로 사용하여 실제 측정시료와 같은 조건으로 준비하였다. PSA 준위를는 40에서 140까지 변화 시키면서 알파영역에서 ^{241}Am의 계수율이 최대가 되고 베타영역에서 $^{90}Sr/^{90}Y$에 대한 계수율이 최대가 되는 동시에 파형겹침(spillover) 현상이 최소가 되는 조건을 최적 PSA 준위로 설정하였다.[15]

2.2.2. 계측효율 및 검출한계

백그라운드는 시스템의 검출한계 및 Figure of merit(FOM)과 직결된다. 따라서 시스템의 백그라운드를 알기 위해서는 Ar으로 세정한 섬광용액을 사용하여 우라늄이 거의 없는 blank 시료를 준비한 후 장시간 계측하여야 한다. 그러나, 실제시료는 물에서 우라늄을 추출하게 되므로 우라늄 추출과정에서 물과의 반응에 의한 섬광액 열화로 백그라운드 준위가 상승할 수 있다. 따라서 실제 계측 시료와 동일한 조건을 만들기 위해 우라늄이 거의 없는 초순수 백그라운드 시료 3개를 세정작업을 한 섬광용액으로 추출하였다. 이 백그라운드 시료를 장기간 계측하여 얻은 값으로 시스템의 검출한계를 계산하였다. 우라늄의 계측효율은 표준용액(12.78 Bq/mL)을 초 순수 100 mL에 첨가하여 시료 전처리과정을 거쳐 액체섬광계수기로 측정하여 계산하였다. 시료의 측정효율 값을 결정하는데 있어서 이들 표준시료의 재현성을 확인하기 위해 같은 시료를 5개 제조하여 각각의 측정효율을 측정한 후 측정효율의 평균값을 실제시료 측정효율 값으로 적용하였다. 측정효율의 불확도는 1% 내외로 일치하였다.

2.2.3. pH에 따른 우라늄 추출 효율

우라늄의 추출은 pH에 민감한 것으로 알려져 있다. 또한 실제 시료의 경우 현장에서의 산 처리 여부 및 채취시료들의 pH가 각기 다를 수 있으므로 pH가 우라늄 추출에 미치는 영향을 조사 하였다. 우라늄 추출시 pH에 따른 추출효율 실험을 위해 우라늄표준용액을 초 순수에 희석하여 방사능이 12.78 Bq/mL 인 2차 표준 용액을 준비한 후, 초 순수 100 mL에 2차 표준용액 1 mL를 첨가하였다. 준비된 시료에 질산 및 수산화나트륨을 첨가하여 pH를 0.5-10 부근으로 조정하였다. 여기에 섬광용액 23 mL를 혼합한 후 수분 정도 교반 시키고 유층과 수층이 완전히 분리된 후에 수층은 버리고 유층에서 20 mL를 측정용기에 취한 다음, 용해된 산소 혹은 라돈의 제거를 위해 Ar 가스로 2분 동안 기체 세정 후 측정하였다. *Fig.* 2는 우라

www.kci.go.kr

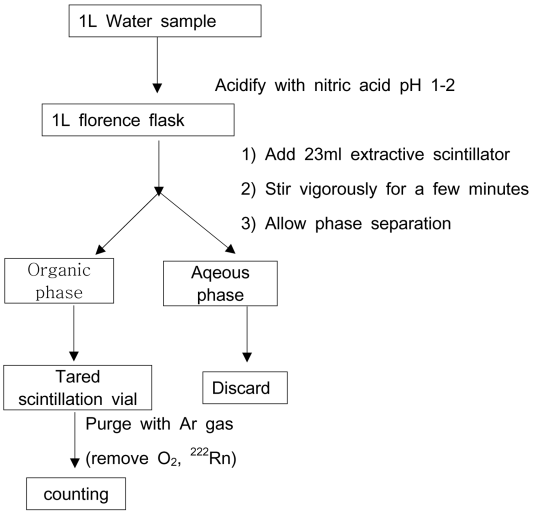

Fig. 2. Schematic diagram of uranium extraction from groundwater sample.

늄 추출실험 의 순서를 나타낸 것이며 pH 변화에 따른 우라늄 추출효율을 비교하였다.

2.2.4. 시료량에 따른 우라늄 추출 효율

지하수 중 우라늄 시료는 우라늄 농도에 따라서 시료량을 달리 해서 사용해야 하므로 시료량이 추출효율에 영향을 미치는 경우가 발생할 수 있으며 일부시료는 농축해서 사용해야 하는 번거로움이 발생한다. 따라서 시료량이 우라늄 추출효율에 영향을 미치는지를 알아보기 위하여 시료량을 100 mL에서 1 L 까지 변화 시키며 실험하였다. 이를 위해 각각의 시료에 우라늄 표준시료 1 mL을 첨가하여 pH를 2 정도로 조절한 후 우라늄 추출실험 순서에 따라 시료량에 따른 우라늄 추출효율을 비교하였다.

2.2.5. 개발된 방법의 검증

확립된 분석법의 실용성을 확인하기 위하여 대전지역에서 지하수 4개를 채취하여 ICP-MS와 동시 실험하고 결과를 비교함으로써 지하수 내 우라늄 동위원소 측정법의 정량성을 간접적으로 확인 하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. PSA 준위 설정

지하수내 라돈함량 측정을 위해 LSC 사용에서 PSA는 매우 중요한 인자이다. ^{241}Am과 ^{90}Sr/^{90}Y를 이용하여 최적의 PSA 준위를 설정하는 방법에서는 파형겹침을 이용하며 파형겹침이 최소가 되는 최적 PSA 준위는 100으로 결정하였다. PSA 준위 변화에 따른 파형겹침의 관계는 *Fig.* 3에 나타나 있다.

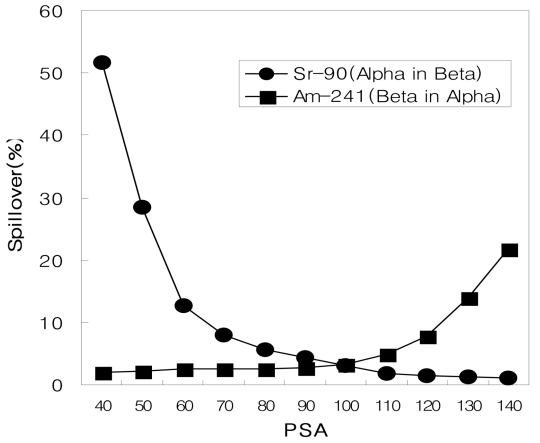

Fig. 3. Alpha and beta crossover for alpha; ^{241}Am, beta; ^{90}Sr in Optiphase HiSafe3.

3.2. 우라늄 추출효율에 미치는 pH 영향

표준용액을 이용하여 액체섬광계수기로 측정한 스펙트럼을 *Fig.* 4에 나타내었다. 측정된 우라늄의 스펙트럼에서 구한 진계수율을 이용하여 계측효율을 다음의 식 (1)을 사용하여 구하였다.

$$U_C(Bq/L) = \frac{CR \cdot V_{OT} \cdot 1000}{V_{OC} \cdot V_S} \quad (1)$$

CR : 진계수율

V_{OT} : 추출섬광용액의 총부피

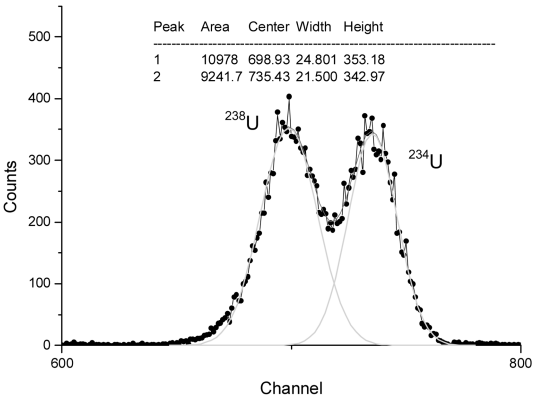

Fig. 4. Alpha spectrum of ^{238}U and ^{234}U at equilibrium condition.

www.kci.go.kr

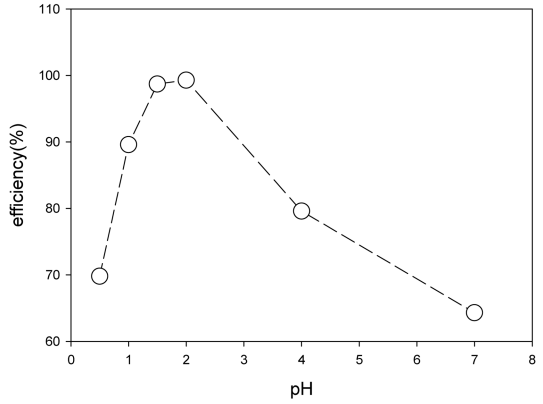

Fig. 5. U extraction efficiency as a function of pH for groundwater.

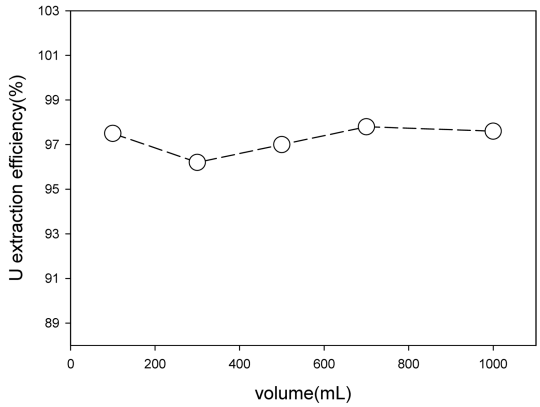

Fig. 6. Uranium extraction efficiency as a function of groundwater volume (volume of extraction solvent is 23 mL).

V_{OC} : 계측에 사용된 섬광액의 부피
Vs : 초기시료 부피

표준시료를 이용한 우라늄의 측정효율은 95.93±0.77%이었으며, 5시간 계측할 경우 검출한계 값은 0.018 Bq/L이었다. 실험결과 우라늄의 추출효율은 pH에 매우 민감한 것으로 나타났다. *Fig.* 5는 pH에 따른 우라늄의 추출효율을 나타낸 것이다. 물 시료에 pH를 0.5에서 10까지 변화시켜 조사해본 결과, pH에 따른 추출효율은 pH 10을 제외하면 64.3-99.3%의 범위를 보였다. *Fig.* 5에서 보듯이 추출효율은 pH 0.5에서 68% 이었으며 pH가 증가함에 따라 급격하게 증가하여 pH가 2 일 때 99.3%의 최대 추출효율을 나타냈다. 한편 pH가 4 이상부터는 추출효율이 80% 미만으로 떨어졌으며 pH 10 부근에서는 수층과 유층의 분리가 제대로 이루어지지 않아 정확한 추출효율의 측정이 불가능하였다. 위 실험결과 pH가 2일 때 추출효율이 최적임을 확인할 수 있었다. 보통 수중에 용해되어 존재하는 우라늄은 pH에 따라 주로 U^{4+}와 U^{6+}의 산화상태를 가진다. 우라늄 이온은 반응성이 매우 커서 염소이온, 질산이온, 황산이온, 탄산이온들과 같은 다른 원소들과 쉽게 결합하여 복합 화합물의 형태로 지하수 속에 존재한다. 이 중에서도 pH < 2.5인 경우에는 산소와 결합된 UO_2^{2+}의 우라닐 이온으로 100% 존재하는 것으로 알려져 있으며, 용해된 우라늄 이온의 종류가 우라늄 추출효율에 영향을 주는 것으로 생각된다. 결론적으로, 이들 실험결과로부터 pH 조절이 우라늄 추출효율에 가장 중요한 역할을 하는 인자인 것으로 알 수 있다.

3.3. 우라늄 추출효율에 미치는 시료량 영향

지하수 우라늄시료는 농도에 따라서 농축하거나 또는 원수 그대로 사용하는 경우, 시료량이 추출효율에 영향을 미칠 수 있을 것으로 예상되었다. *Fig.* 6는 시료량을 100 mL에서 1 L까지 변화시킴에 따른 우라늄 추출효율을 나타낸 것이다. 조사하였다. *Fig.* 6에서 볼 수 있는 바와 같이 추출효율은 전체범위에서 96.5%에서 97.8% 로 시료 량에 따라 거의 변화하지 않음을

Table 1. Concentration and isotopic ratio of uranium and comparison of the results by two methods of Daejeon groundwater

Sample No.	LSC			ICP/MS	LSC/ICP-MS
	$^{234+238}$U (Bq/L)*	^{238}U Bq/L(μg/L)**	^{234}U/^{238}U	^{238}U (μg/L)	^{238}U***
1	6.69	3.45(278)	0.95	267	1.04
2	1.24	0.64(51.6)	1.07	47.2	1.09
3	5.11	2.08(167)	1.40	152	1.10
4	0.59	0.30(24.2)	0.88	22.9	1.06

*U 추출효율 95.93±0.77% 적용
**^{238}U 비방사능값 적용 계산
***LSC/ICP-MS의 ^{238}U 농도 비교값

www.kci.go.kr

알 수 있었다. 이와 같은 결과는 실제 지하수 시료를 측정할 때 농축을 하는 번거로운 전처리 과정 없이 시료 량을 변화시켜 사용하여도 추출효율에는 영향을 미치지 않음을 알 수 있었다.

3.4. 대전지역 지하수 측정 결과

본 연구를 통해 확립된 분석법을 이용하여 대전지역 지하수를 조사하였다. 현재 지하수를 음용수로 사용하는 네 곳을 선정하여 이들 중의 우라늄 동위원소의 농도 및 존재 비를 조사하였다. 아울러 결과의 검증을 위해 기존의 ICP/MS 결과와도 비교 분석하였다. *Table* 1은 대전지역 지하수 중 우라늄의 농도, 동위원소 존재 비 및 ICP/MS 와의 비교 분석 결과를 나타낸 것이다. 분석결과 네 곳 모두 세계보건기구(WHO)에서 권고하는 음용수 규제치인 15 μg/L 보다 매우 높은 값을 나타냈다. 네 곳의 지하수의 우라늄 방사능 농도는 0.59-6.69 Bq/L, $^{234}U/^{238}U$의 방사능 비는 0.88-1.40, 그리고 각 시료의 ^{238}U 에 대한 농도는 24.2-278 μgL 이었다. *Table* 1에 나타난 바와 같이 두 분석방법으로 측정된 ^{238}U의 결과 값(LSC/ICP-MS)을 비교해 보면 ICP/MS와 LSC 두 분석법에 따른 측정값의 차는 10% 미만으로 비교적 잘 일치하고 있는 것을 알 수 있으며, 이로서 액체섬광계수법의 간접적으로 확인할 수 있었다.

4. 결 론

파형분석 기능과 α-선 에너지 영역에서 백그라운드가 낮고 계측효율이 높은 장점을 가진 저준위 액체섬광계수기를 이용하여 물 시료 중 우라늄 동위원소 측정의 최적 측정조건을 도출하고 실제 지하수 중의 우라늄 동위원소 분석에 적용하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. ^{241}Am과 $^{90}Sr/^{90}Y$를 이용하여 최적의 PSA 준위를 설정하는 방법에서는 파형겹침이 최소가 되는 PSA 준위는 100으로 결정하였다.

2. pH 및 시료 량에 따른 우라늄시료의 최적 분석조건을 조사한 결과, pH 2 에서 99.3%의 최대 추출효율을 얻었으며 검출한계는 0.018 Bq/L였다.

3. 시료 량을 100 mL에서 1 L 까지 변화시켜 추출효율을 조사한 결과 시료 량이 추출효율에 미치는 영향은 미미함을 알 수 있었다.

4. 본 방법을 대전 일부 지역 네 곳의 지하수에 적용한 결과, 우라늄의 농도는 0.59-6.69 Bq/L 범위를 나타냈으며 $^{234}U/^{238}U$의 방사능 비는 0.88-1.40이었다. 아울러 ^{238}U 농도는 ICP/MS와 비교 분석값과 10% 미만의 편차로 일치하는 결과를 얻었다.

5. 본 연구에서는 지하수 중 우라늄 동위원소 비 측정을 위한 최적 추출 및 측정조건을 확립하였으며 실제 시료에 이를 적용 성공적으로 적용할 수 있었다. 본 실험에서 섬광용액을 이용한 용매추출은 수용액 시료중의 우라늄을 신속 정확하게 추출하였으며 분해능이 우수하여 지하수중의 우라늄 동위원소 및 악티늄 계열 동위원소 측정 시 감도면 에서 매우 효과적인 수단이 될 것으로 생각된다.

참고문헌

1. U.S. EPA (United States Environmental Protection Agency), Ionizing radiation fact book. EPA-402-F-06-061, U.S.EPA, 18 p. (2007).
2. J. H. Han and G. H Park, *The Korean Soc. Economic and Environ.*, **29**, 589-595 (1996).
3. Y. Oh, J Lee and K. Shin., *J. Korean Soc. Water Quality*, **23**(2), 201-205 (2007).
4. J. Y. Lee, The Geological Society of Korea 2008, **44**, 341-352 (2008).
5. Y. Y. Yoon, S Y Cho, K.Y. Lee, Y. Kim., K. of Korean Asso. for Radio. Prot., 31, No. 1 25-30 (2006).
6. Murakami, T., Ohnuki, T., Isobe, H. and Sato, T., *Am. Mineral.,* **82**, 888-899 (1997).
7. Brugge, D., de Lemos, J. L. and Oldmixon, B., *Rev. Environ. Health,* **20**, 177-193 (2005).
8. Langmuir D., Aqueous Environmental Geochemistry. Prentice-Hall. New Jersey, 600 (1997).
9. K. Bower, a. Angel, R. Gibson, T. Robinson, D. *J. Radioanal. Nucl. Chem.,* **181**(1), 97-107 (1994).
10. E. M. Aieta, Singley, J. E., Trussel, A. R., Thorbjarnson K. W. and M. J. McGuire, *J. AWWA*, **17**(6), 144-152 (1987).
11. C. T. Hess, J. Michael, T. R. Horton, H. M. Prichard, and W. A. Coniglio, *Health Phys.* **48**, 53-58 (1985).
12. USEPA 908.1
13. H. J. Woo, Y. Y Yoon and S. Y. Cho, KIGAM KR_96(T)-17, MOST (1996).
14. M. Forte, R. Rusconi, E. Di Caprio, S. Bellinzona and G. Sgorbati, *Environ. Chemical Anal., II,* 128-142 (2003).
15. L. Salonen, *Sci. Total Environ.,* **130-131**, 23-25 (1993).

www.kci.go.kr