

Organically Bound Tritium in the Plants after Acute HTO Exposure

Sang-Bog Kim, Won-Yun Lee, Young-Ho Choi and Jeong-Ho Lee
Korea Atomic Energy Research Institute

HTO 피폭후 식물의 조직결합수에 관한 연구

김상복 · 이원윤 · 최용호 · 이정호
한국원자력연구소

Abstract - Tritium is released into the environment as various form but HTO is most relevant to the incorporation of tritium into living organisms and to the formation of OBT. Tritiated compounds may be transported to humans via several tropic levels. Retention times of organically bound tritium in organisms are considerably longer than those of tritiated water, which has significant consequences on exposure dose estimation. It is rather difficult to predict the amount of OBT produced by the photosynthetic process of plants because it may be influenced by a multitude of environmental factors and plant parameters. Tritiated organic matters are classified as the exchangeable or nonexchangeable bound tritium according to the bound form. After short term HTO exposure in plants, the formation and uptake of OBT were evaluated.

Key words : HTO, Organically Bound Tritium, Exposure, Plants

요약 - 환경에서 삼중수소는 주로 HTO 형태로 존재하며, 이동성이 크므로 대기권으로 쉽게 증발한 후 광합성작용을 거쳐 식물의 영양분과 결합한 다음 먹이연쇄 과정을 통하여 최종적으로 사람에게까지 전달된다. 조직결합수(OBT)는 인체 내에서 장시간 체류할 수 있으므로 피폭선량 측면에서 지금까지 주로 고려되어진 조직자유수(TFWT)와는 다르게 인식되어야 한다. 육상생태계 내에서 OBT는 식물의 광합성 작용에 의해 주로 생성되지만 다양한 환경매체의 영향을 받기 때문에 생성량을 예측하기는 매우 어렵다. 특히 생체 내에서 결합형태에 따라 교환성 삼중수소와 비교환성 삼중수소로 구분된다. 우리 나라 주요 곡류의 하나인 벼의 어린 시기와 잔디에 인위적으로 HTO에 피폭시킨 후 조직결합수의 생성율을 비교하였다.

중심어 : 삼중수소, 조직결합수, 피폭, 식물

서 론

삼중수소(Tritium)는 생물체를 구성하는 3대 원소의 하나인 수소와 환경 내에서 거동이 동일하다. 핵융합이나 중수형 발전소의 경우 다른 핵종에 비해 삼중수소의 생성량이 훨씬 많은 것으로 보고되고 있다[1]. 그러나 삼중수소는 주로 HTO 또는 HT의 형태로 환경 중으로 방출될 수 있으나 대부분이 HTO의 형태로 존재하므로 물을 필요로 하는 생명체와 직접적인 관련이 있다.

일단 환경 중으로 방출된 삼중수소는 식물이나 동물 등에 의해 다양한 형태의 유기물과 결합되어 질 수 있다.

특히 HTO는 살아있는 생물체 내에서 수소 대신에 조직결합수(Organically Bound Tritium: OBT)를 형성한다. 이 경우 조직결합수는 선량평가에 중요한 조직자유수(Tissue Free Water Tritium: TFWT)의 반감기보다 상당히 긴 체내 잔류시간을 보여주고 있다.

일반적으로 환경 중에 트리튬이 방출된 후 OBT가 생성되는 가장 중요한 경로의 하나가 녹색식물의 잎에서 일어나는 광합성 작용이다. 녹색식물에 의해 합성된 삼중수소 화합물은 여러 영양단계를 거쳐 사람에게까지 도달하게 된다. 최근에 선량평가 측면에서 OBT의 중요성이 인식되면서 ICRP[2]에서는 피폭선량 평가시 OBT 기여도를 고려하기를 권장하고 있다.

최근 대기 중에 방출된 HTO가 기상조건에 따라 다르지만 OBT에 의한 선량기여도가 호흡이나 피부흡수에 의한 것보다 4~23배 정도 더 크다는 사실이 피폭선량 평가 모델연구에서 보고되고 있다[3]. 삼중수소는 원자력발전소, 연구용 원자로, 의료시설 및 폐기물 처리시설 등에서 방출될 수 있지만 경수로형 보다는 중수로형에서 많이 생성되므로 CANDU형의 경우 피폭관리 측면에서 삼중수소의 거동연구는 필수적이라 할 수 있다.

본 논문은 OBT의 중요한 생성과정과 이행경로 등을 고찰하였으며 주요 농작물에 삼중수소 피폭 실험을 통하여 식물체 내에서 일어나는 조직자유수와 조직결합수의 상관관계 등을 규명하여 우리나라 고유의 삼중수소 피폭평가 코드 개발의 기초 자료를 제공하고자 하였다.

재료 및 방법

실험재료

벼(*Oriza japonica*) 씨앗을 살충제로 멸균한 후 실험 Pot (60 x50 x15cm) 에서 벼를 재배하였다. 약 20cm 크기로 자라난 미성숙 벼는 3~4포기씩 또다른 Pot (dia 20 x 25cm)로 이식하였으며 이때 물은 충분히 공급하였다. 그러나 벼는 성장과정에 많은 일조량이 필요하나 본 실험은 독일(FZK)에서 수행되었기 때문에 우리 나라에서와 같이 충분한 생육조건을 구비할 수 없었다. 또 실험수행기간 때문에 벼의 크기가 약 25cm일 때 HTO로 피폭시켰다. 잔디는 중부 독일 지역에 보편적으로 자생하는 종을 선택하였다.

삼중수소 피폭

식물이 재배된 Pot에 투명한 아크릴로 만들어진 exposure box (30 x30 x100cm)를 설치하였다. 이때 피폭상자내의 삼중수소 농도구배를 균일하게 하기 위해 팬을 설치하여 공기를 순환하였으며 동시에 온도와 습도를 측정하여 삼중수소 농도계산에 반영하였다. 삼중수소 농도는 tritium monitor (0.5 L/min.) 와 bubbler system (0.3 L/min.)을 이용하여 cross-check를 실시하였다. 피폭시작 5분전에 피폭용기의 뚜껑을 덮었으며 heating system을 이용하여 약 50분 동안 10 MBq HTO(2ml)를 연속적으로 증발시켜 HTO vapour를 생성시켰다. 피폭시작 1시간 후에 뚜껑을 열고 대용량 팬을 이용하여 약 1분 동안 외부공기를 주입시켜 생성된 HTO를 제거하였다.

분석방법

식물에서 조직자유수는 냉동동결 건조법(Freezer drying method)으로 추출한 후 액체 섬광 계수기 (1414 WinSpectral, Wallac)로 삼중수소 농도를 측정하였다. 또한 건조된 시료는 잘게 분쇄한 후 15ml의 tritium free water를 가하여 다시 한번 동결 냉동건조를 실시하여 교환성 삼중수소를 제거하였다. 그 다음 건조시료는 petri dish에 잘 편 후 wet air를 이용하여 그림 1과 같이 exchangeable tritium의 농도가 0.1 Bq/ml 이하가 될 때까지 교환성 삼중수소 제거 실험을 계속하였다. OBT의 분석을 위해 Oxidizer 306 (Canberra-Packard)을 이용하여 연소시키기 전에 건조시료는 P₂O₅ (Sicapent, Merck, FRG)로 진공건조 시킨 후 약 0.5g의 연소시료를 제작하였다. OBT는 방사능

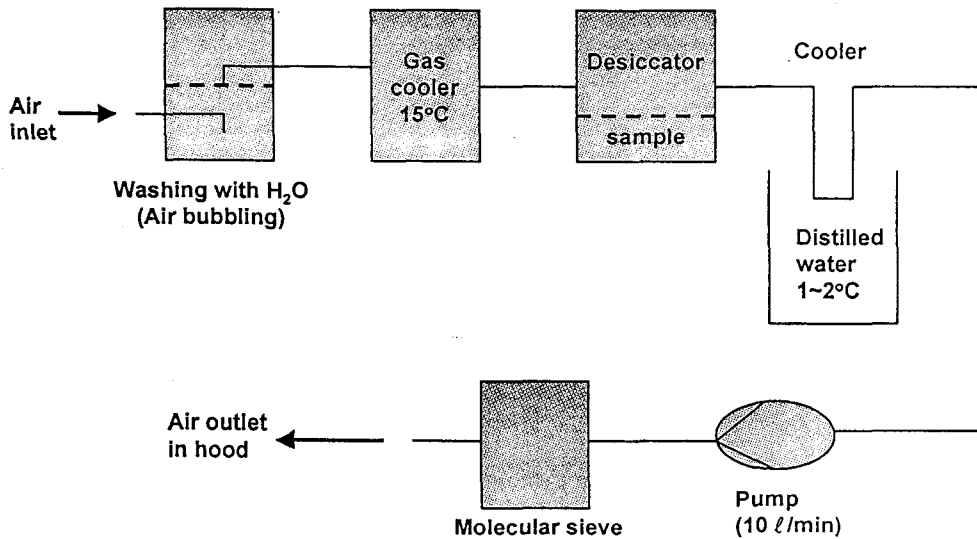


Fig. 1. Exchangeable OBT removal system of biological materials.

농도가 건조중량당 Bq로 결정하였다.

결과 및 고찰

조직자유수 및 조직결합수

조직자유수란 액체상으로 존재하며 생체막이나 세포벽에 의해 생체 내에서 구분은 되어 있으나 서로 매우 빠르게 교환될 수 있는 상태의 삼중수소를 말한다[4]. 실험실에서는 세포나 조직을 원심 분리 또는 filtration 등을 통하여 유기물로부터 조직자유수를 분리할 수 있으나 근래에 동결냉동건조법이 많이 이용되고 있다. 조직결합수는 다양한 방법으로 조직자유수를 제거한 잔사에 산소를 이용하여 완전연소 시킨 후 얻을 수 있는데, 분석방법은 combustion법, plasma법[5] 등이 제시되고 있으나 분리가 용이하지는 않다. 또한 조직결합수는 유기물과 삼중수소의 결합강도에 따라 교환성 및 비교환성으로 구별되어 질 수 있다.

광합성(Photosynthesis)

육상생태계내에서 OBT형성의 주체는 식물 또는 동물이다. 비록 토양상층부에 상당량의 OBT가 존재한다 하여도 대부분의 OBT는 식물이나 동물의 대사산물로 생성된다. 일반적으로 광합성의 복잡한 과정은 크게 명반응과 암반응으로 구분할 수 있다. 명반응이란 물의 광분해에 의해 환원제(NADPH₂),

에너지(ATP) 및 산소분자가 생성되는 것이다. 이때 환원제와 에너지는 암반응에 다시 사용되며 명반응의 1차 반응조건 아래서 HTO로부터 삼중수소는 탄소원자에 비교환성 결합을 하게 된다. 이때 삼중수소는 가역반응이 쉽게 일어날 수 있는 부위에도 결합되어 질 수 있다. 명반응 조건 아래서 HTO에 피폭되면 수초 내에 삼중수소가 결합된 물질 즉, TCA cycle의 결과로 생성되는 아미노산들이 발견된다는 보고가 있다[6]. 암반응은 실질적으로 명반응보다 OBT 형성과정에 더 중요한 역할을 하게 된다. 빛이 없을 때 HTO에 피폭되어도 빛이 있을 때 피폭된 만큼의 삼중수소는 측정되지만 상대적으로 aspartic acid나 alanine 같은 특정 아미노산에 삼중수소가 많이 결합된다. 이러한 사실은 광합성의 명반응 과정에서 생성된 물질들이 암반응에서 다시 사용되고 있음을 시사하고 있다. 식물의 조직자유수에서 유래된 조직결합수를 예측한다는 것은 그 과정이 복잡한 환경매체(빛, CO₂ 농도, O₂ 농도, 온도, 대기흐름, 물 등)의 영향을 받기 때문에 정량적으로 판단하기는 상당히 어렵다. 더욱이 이러한 인자는 밤과 낮에 따라 다를 뿐 아니라 계절적 변화도 상당히 크다. 그러나 총광합성율은 CO₂ 소비율로 측정할 수 있으므로 CO₂ gas 교환량과 공기중의 삼중수소 농도를 측정한다면 OBT 생성량을 이론적으로 추정할 수는 있을 것이다.

Table 1. Nonexchange and exchangeable hydrogen of plant and animal products as assumed from stoichiometric calculations

Plants and animal products	Nonexchangeable hydrogen content (% weight of dry matter)	Exchangeable hydrogen content (% weight of dry matter)
Rice plant	7.51	2.48
Chinese cabbage	7.87	2.59
Milk	8.10	2.67
Beef	7.84	2.59
Pork	7.93	2.62
Egg	7.99	2.64
Poultry	7.81	2.58

교환성 삼중수소(Exchangeable tritium)

삼중수소와 수소의 교환반응은 amino, hydroxyl, sulfurhydroxyl, α -keto group 같은 화학그룹에서 일어나고 있다. Amino, hydroxyl, sulfurhydroxyl 결합은 수소가 쉽게 해리될 수 있으나 α -keto 그룹은 수소가 해리될 때 α -enol group으로 변형되어 진다. 또한 대부분의 유기물은 교환성 수소를 함유하고 있기 때문에 HTO에 오염이 되면 수초 내에 가능한 위치에 있는 교환성 수소부분이 삼중수소로 바뀌게 된다. 또 그 같은 부분이 거대분자의 internal site에 존재한다면 조직자유수와 접촉이 어렵기 때문에 매우 천천히 변화될 것이다. 결국 HTO 피폭후에 교환성 삼중수소의 총량은 조직자유수의 삼중수소 농도만큼 감소한다고 판단된다. 본 실험에서 사용한 교환성 삼중수소 제거장치의 경우 교환성 삼중수소를 완전히 제거하는데 소요되는 시간은 시료의 농도에 따라 많은 차이가 있었다. 조직자유수의 농도가 100Bq/ml 이상일 경우 약 1주일 정도 소요되었다.

비교환성 삼중수소(Nonexchangeable tritium)

삼중수소는 효소학적 촉매반응을 통하여 탄소원자와 안정된 결합을 할 수 있다. 강산이나 강알칼리를 제외한 조건에서 C-H결합은 안정한데 이때 수소 대신에 삼중수소가 결합된 것이 비교환성 OBT이다. 교환성 위치에 있는 삼중수소도 또다른 효소반응에 의해 비교환성 지역으로 재배치 될 수 있다. 결국 삼중수소가 결합된 유기물은 생태계 내에서 교환성 삼중수소는 제거되고 탄소원자와 결합된 비교환성 삼중수소만 남게 되므로 피폭선량

평가시에는 비교환성 OBT만 고려되어야 할 것이다[7]. 표 1에서는 우리가 주로 식용으로 많이 소비하는 식품들에서 교환성 및 비교환성 삼중수소의 양을 건조중량당 무게 백분율로 표시하였다. 대부분의 동식물에서 수소의 함량은 10% 이내였으며 그 중에서 약 80%가 비교환성 삼중수소로 나타났다.

잔디에 HTO 피폭실험

일반적으로 식물은 광합성률의 정도에 따라 C3 그룹 및 C4 그룹으로 분류할 수 있다. C3 그룹의 대표적인 식물이 보리이지만 C4 식물의 경우는 옥수수로 보고되고 있다[8]. 본 실험에 사용된 벼와 잔디의 경우도 분류학적으로는 C3 그룹에 속한다.

잔디의 경우 조직자유수중 삼중수소의 농도는 피폭 6시간 후에 피폭직후에 비해 약 7.12%를 나타내었으며 24시간 후에는 약 1% 준위로 낮아졌다(표 2). 그러나 OBT의 경우는 피폭 한시간후 삼중수소의 농도가 피폭직후의 OBT농도에 비해 161%까지 증가하였다. 또한 24시간이 경과한 후에도 약 88%의 준위를 유지하고 있었다(그림 2,3). 광합성 작용이 OBT 생성의 주요 원인이라면 광합성 작용이 활발한 낮 시간과 밤시간의 OBT 생성율의 차이가 확실할 수 있다.

낮 시간에는 식물의 기공이 대부분 열려 있으나 밤시간에는 닫혀 있을 것으로 예측되어 피폭시키는 삼중수소의 양을 낮 시간에 비해 밤 시간에 1.5배 되게 하였다. 그래서 피폭직후의 조직자유수나 조직결합수의 농도는 야간피폭일 때가 주간피폭보다 약 18% 정도 높게 측정되었다. 그러나 피

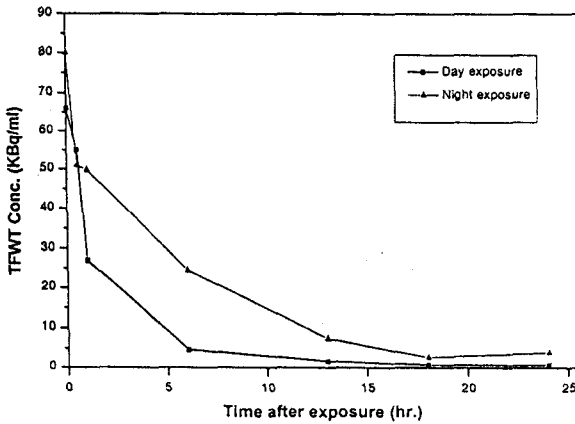


Fig. 2. Comparison of tissue free water tritium concentration in grass at the end of HTO exposure under different light conditions.

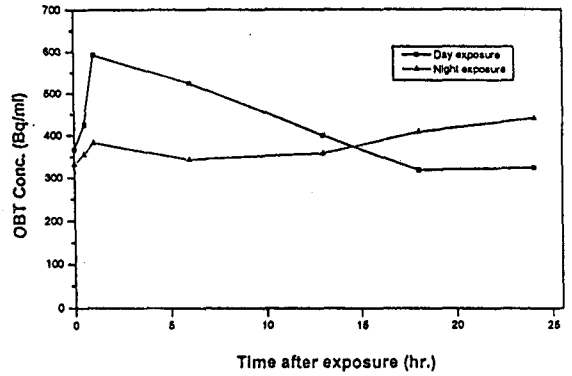


Fig. 3. Comparison of organically bound tritium concentrations in grass at the end of HTO exposure under different light conditions.

폭후 조직자유수의 감소율은 주간피폭의 경우가 야간피폭때 보다 훨씬 급격히 감소하고 있었다. 이는 야간의 경우 식물의 조직자유수와 외부공기와의 접촉이 낮게 일어나고 있음을 반증하고 있다.

벼의 어린 시기에 HTO 피폭실험

논에서 재배되는 벼의 경우 외형적인 모양은 일반토양에서 자라는 잔디와 비슷하지만 삼중수소 피폭후 나타내는 식물학적 특성은 많은 차이가 있었다. 벼의 경우 조직자유수는 3시간 후 약 2.5%, 24시간 후에는 약 0.6%의 준위를 나타내고 있었다

(표 3). 그러나 OBt의 경우 피폭 5시간후 129%로 증가하다가 24시간 후에는 48.2%의 준위를 나타내었다(그림 4). 이러한 결과는 벼의 어린 시기에 OBt 형성이 잔디에서 보다 앞에서 상대적으로 많이 일어나고 있음을 암시하고 있었다. 그러나 OBt 형성은 식물체내 조직자유수나 식물대사 등과 밀접한 관계가 있으므로 더 많은 연구가 요구되고 있다. 한편, HTO에 피폭되는 동안 피폭상자내의 습도가 벼의 경우 약 85% 정도였으나 잔디의 경우는 약 60% 정도에 지나지 않았다. 이러한 사실은 동량의 삼중수소에 피폭이 되더라도 습도가 높거나 물이 풍부한 지역에 서식하는 식물이

Table 2. TFWT, OBt concentrations and specific activity of different exposure conditions in green grass

DAY EXPOSURE				NIGHT EXPOSURE			
Time after exposure	TFWT (Bq/ml)	OBt (Bq/ml)	SAR (OBt/TFWT)	Time after exposure	TFWT (Bq/ml)	OBt (Bq/ml)	SAR (OBt/TFWT)
0	66,000	367	5.56E-03	0	80,000	332	4.15E-03
0.5	55,000	425	7.73E-03	0.5	51,000	355	6.96E-03
1	27,000	592	2.19E-02	1	49,800	383	7.69E-03
6	4,700	525	1.10E-01	9	24,500	343	1.40E-02
13	1,650	400	2.40E-01	13	7,500	358	4.77E-02
18	770	317	4.10E-01	18	2,650	408	1.50E-01
24	670	323	4.82E-01	24	3,890	440	1.10E-01

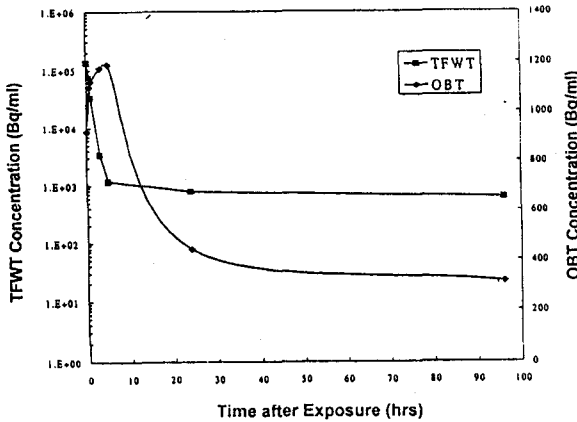


Fig. 4. Comparison of TFWT and OBT concentration in the rice plant after HTO exposure.

건조하거나 물이 없는 지역에 서식하는 식물보다 삼중수소의 영향을 많이 받을 수 있는 것으로 판단되었다. 그러나 벼의 경우 조직자유수의 감소율이 잔디보다 훨씬 빨리 진행되므로 벼이삭의 성장 시기가 아니면 삼중수소 피폭으로 인한 영향은 피폭선량 측면에서 무시할 수 있었다.

조직자유수와 조직결합수의 상관관계

SAR value (Specific activity ratio)는 평형조건 아래서 환경시료에서 측정되는 OBT와 TF-WT 사이의 비율을 나타내지만 R value는 유기물의 조직수에서 삼중수소와 수소사이의 비율을 나타내고 있다. SAR은 Moghisshi 등[9]에 의해 생물체에 삼중수소가 농축되는지 생물학적 시스템의 가능성을 추정하는 자료로 이용된 바 있다. SAR 값은 음식물의 OBT로 부터 동물조직의 OBT로 이행되는 직접적인 경로를 반영할 뿐 아니라 생명체 내에서

TFWT 분획 보다 OBT 분획이 생체 내에서 잔류 시간이 길다는 것을 나타내기도 한다. Moghisshi 등[9]은 삼중수소 농축가설을 설명하기 위하여 동물실험을 수행한 바 SAR 값이 거의 1.0으로 조사되므로 평형조건에서는 OBT에서 삼중수소의 농축 증거는 없다고 결론지었다. 그러나 삼중수소 피폭 실험을 하는 동안 대기중의 삼중수소 농도는 온도와 햇빛의 강도 등 외부여건에 따라 크게 달라질 수 있다. 결국 조직자유수의 농도는 실험조건에 따라 달라질 수 있으므로 OBT 형성을 비교하기 위하여 HTO 피폭이 끝난 후 제일 먼저 채취하는 식물 잎의 조직자유수 농도와 비교하기도 한다[10]. 본 실험의 경우 피폭후 각각의 시료채취 시점에서 조직자유수와 조직결합수의 비율을 측정한 결과 피폭직후에는 비슷한 준위를 나타내고 있었으나 피폭 한시간 후에 주간피폭이 야간피폭에 비해 7~8배 높은 비율로 측정되었다(표 2,3). 이러한 비율은 피폭 24시간 후에도 약 3배 정도 높은 OBT 생성율을 보여주고 있었다. 이러한 사실은 식물의 광합성 작용이 OBT 생성에 매우 중요한 역할을 하고 있음을 시사한다. 잔디실험의 경우 피폭 18시간 후에 SAR 값이 최대를 나타내고 있으나 벼의 경우 피폭 5시간 후 최대치로 나타났다(그림 5).

결국 조직자유수와 조직결합수의 상관관계를 이용하여 삼중수소의 오염여부를 규명하고 정확한 피폭선량을 추정하기 위해서는 더 많은 식물의 성장시기에 따른 OBT 생성율을 조사할 필요가 있다.

Table 3. TFWT, OBT concentration and SAR values of rice plant after HTO exposure.

Time after HTO exposure	TFWT (Bq/ml)	OBT (Bq/ml)	SAR (OBT/TFWT)
0	134,353	921	6.80E-03
0.5	76,245	1,099	1.40E-02
1.0	32,823	1,121	3.40E-02
3.0	3,404	1,175	3.35E-01
5.0	1,156	1,191	1.03E+00
24	785	444	5.65E-01
96	630	315	5.00E-01

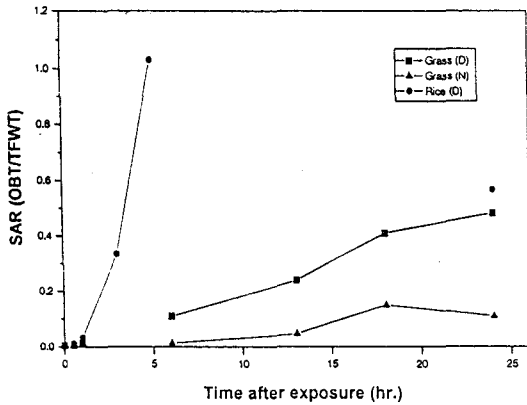


Fig. 5. Relationship between TFWT and OBT after HTO exposure under different conditions

결론

생물체 내에서 삼중수소는 조직자유수와 조직결합수의 형태로 존재하고 있으며 조직결합수는 유기물과 삼중수소의 결합상태에 따라 교환성 및 비교환성 삼중수소로 구별하고 있다. 그러나 조직결합수의 많은 부분이 교환성 삼중수소로 구성되어 있어 식물의 광합성율에 따라 OBT 생성에 큰 차이가 있지만 환경매체에 의해 많은 영향을 받기 때문에 OBT 생성량을 정량적으로 추정하기는 어렵다.

HTO 피폭후 식물체내 조직자유수중의 삼중수소 농도는 피폭후 대기중 공기농도에 의해 급격히 희석되고 있음을 알 수 있었다. 반면 OBT는 조직자유수의 영향 및 대사과정에 의해 피폭후 다소 증가하고 있었다. 잔디의 경우 피폭후 조직자유수의 감소율은 주간피폭때가 야간피폭일 때 보다 급격히 감소하고 있었다. 또한 물이 풍부한 지역에서 식하는 식물이 건조한 지역에 있는 식물보다 삼중수소의 영향을 많이 받고 있었다. SAR 값은 야간 피폭 보다 광합성작용이 왕성한 낮시간이 더 크며 관개수가 많이 필요한 벼의 값이 잔디보다 높게 나타났다. 결국 정확한 피폭선량을 추정하기 위해서는 식물의 성장시기에 따른 OBT 생성율을 연구할 필요가 있다.

참고 문헌

1. S. Okada and N. Momoshima, Overview of Tritium: Characteristics, Sources, and Problems, Health Phys. 65(6) : 595-609(1993).
2. International Commission on Radiological Protection. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides. Oxford: Pergamon Press; ICRP Publication 56, Part 1(1990).
3. S. Diabate and S. Strack, Organically Bound Tritium, Health Phys., 65(6) : 698-712(1993).
4. Radiation protection, "European seminar on the risks from tritium exposure", Proceedings of a meeting jointly organized by the Commission of the European Communities and the Belgian Nuclear Centre(CEN/SCK), Mol, Belgium, 22-24 November, EUR 9065 EN(1982).
5. M. A. Kim and F. Baumgartner, Validation of tritium measurements in biological materials, Fusion Technology, 14 : 1153-1156(1997).
6. V. Moses and M. Calvin, Photosynthesis studies with tritiated water, Biochim. Biophys. Acta, 33 : 297-312(1959).
7. H. Amano and M. Atarashi, Model parameters and validation for tritium transfer in plants from atmospheric release, In : Improvement of environmental transfer models and parameters. eds. Frissel, M.J., Brown, R.M., Uchida, S., International Workshop, February 5-6, Tokyo, Japan(1996).
8. S. Diabate and S. Strack, Organically Bound Tritium in Wheat after Short-Term Exposure to Atmospheric Tritium under Laboratory Conditions, J. Environ. Radioactivity, 36(2-3) : 157-175(1997).
9. A. A. Moghissi, E. W. Bretthauer and R. G. Patzer, Biological concentration of H-3. Health Phys. 53 : 385-388(1987).
10. H. Amano, M. Atarashi, H. Noguchi, S. Yokoyama, Y. Ichimasa and M. Ichimasa, Formation of organically bound tritium in

plants during the 1994 chronic HT release experiment at Chalk River, Fusion Technology, 28 : 803-808(1995).