

A Study on Distribution of Cs-137 and Sr-90 in Soils around Taejon Region

Myung-Ho Lee · Chang-Woo Lee · Kwang-Hee Hong · Yong-Ho Choi
Sang-Bok Kim, Doo-Won Park, Jeong-Ho Lee
Korea Atomic Energy Research Institute
(Received 20 May 1995; Accepted 6 September 1995)

대전지역 토양에 대한 Cs-137 및 Sr-90 방사능농도 분포 조사

이명호 · 이창우 · 홍광희 · 최용호
김상복 · 박두원 · 이정호
한국원자력연구소

Abstract - The concentration of Cs-137 and Sr-90 has been analyzed in soils around Taejon region. A correalation was found between the concentration of Cs-137 and the organic matter content. The mean value of Cs-137 was 14.37Bq/kg-dry and that of Sr-90 was 7.95Bq/kg-dry in undisturbed soils around Taejon region. The concentration ratio of Cs-137/Sr-90 was 1.99. The distribution of Cs-137 and Sr-90 was similar to cumulative fallout level and had been more affected by nuclear weapons test than by the chernobyl accident.

Key words : Concentration of Cs-137, Concentration of Sr-90, Cumulative fallout

요약 - 대전지역 토양에 대한 Cs-137 및 Sr-90 방사능농도를 분석하였다. 토양중 Cs-137 농도와 유기물 함량 사이에 일정한 상관관계를 보였다. 인위적 교란이 없는 미경작지 토양에 대한 Cs-137 및 Sr-90의 평균 방사능농도는 14.37Bq/kg-dry와 7.95Bq/kg-dry 수치로 핵실험에 의한 방사성낙하물 농도와 유사한 값을 나타내었다. 미경작지를 포함한 26개 지점에서 Cs-137/Sr-90의 방사능비는 평균 1.99 정도로 Cs-137의 침적 농도가 Sr-90의 경우 보다 두배정도 높음을 알 수 있었다.

Key words : Cs-137 방사능농도, Sr-90 방사능농도, 방사성낙하물.

서론

1945년 7월 미국이 세계 최초로 핵폭발 실험을 한 후 지구상에 약 400회 정도 핵폭발실험을 하였으며 그 에너지는 TNT화약 300Mt에 달한다. 이러한 핵폭발에 의해 대기권에 주입된 주요 핵분열생

성물은 I-131(4,400MCi), Sr-89(1,000MCi), Sr-90(6MCi), Cs-137 (8MCi), Pu-238(8KC i), Pu-239(210KC i), Pu-240(150KC i), 및 Pu-241(4600KC i)등이다[1]. 또한 1986년 4월 26일 구 소련 체르노빌 원자력 발전소 사고로 많은양의 방사성물질이 대기중으로 방출되었고[2] 방출량이

아주 극소량이지만 정기적인 원자로가동 및 핵연료 재처리 과정에서 인공방사성 동위원소가 대류권으로 방출될 가능성이 있다. 대류권 및 성층권으로 방출된 인공방사성 동위원소는 장기간에 걸쳐 빗물과 함께 지표면에 낙하한다. 이 중에서 반감기가 비교적 짧은 I-131(반감기 8일) 및 Sr-89(반감기 53일)은 대부분 감쇄되었고, 반감기가 긴 Sr-90(28.8년), Cs-137(30.2년) 및 플루트륨 동위원소들은 아직도 방사성 낙하물로 환경에서 검출되며 육상환경에서 오염수준은 시간과 지리적 위치에 따라 상당히 변화가 많다[1]. 토양은 환경에 존재하는 방사성 낙하물을 검출하기 위한 대표적인 환경시료이다. 즉 토양중에는 천연 방사성핵종 및 이들의 붕괴

생성물들과 인간의 활동에 의해 생성된 인공 방사성 핵종들이 고루 존재하며 토양중에 존재하는 방사성 핵종은 붕괴 및 기타 환경변화와 관련하여 끊임없이 변하고 있다. 또한 토양속에서 방사성핵종의 용존형태는 점토에 부착하거나, 산화물 혹은 수산화물로 존재하거나 토양 유기물과 착화합물을 형성하거나, 가능성은 적지만 용액속에 존재할 경우도 있다. 토양에 대한 방사성핵종 흡착도는 방사성핵종 농도 및 산화상태, 토양의 pH 및 유기 혹은 무기 리간드 함량에 의존할 뿐만 아니라 강우량, 토양의 종류 및 식물등의 지역적 특성에도 의존한다 [3].

Cs-137과 Sr-90은 환경방사선 감시 측면에서

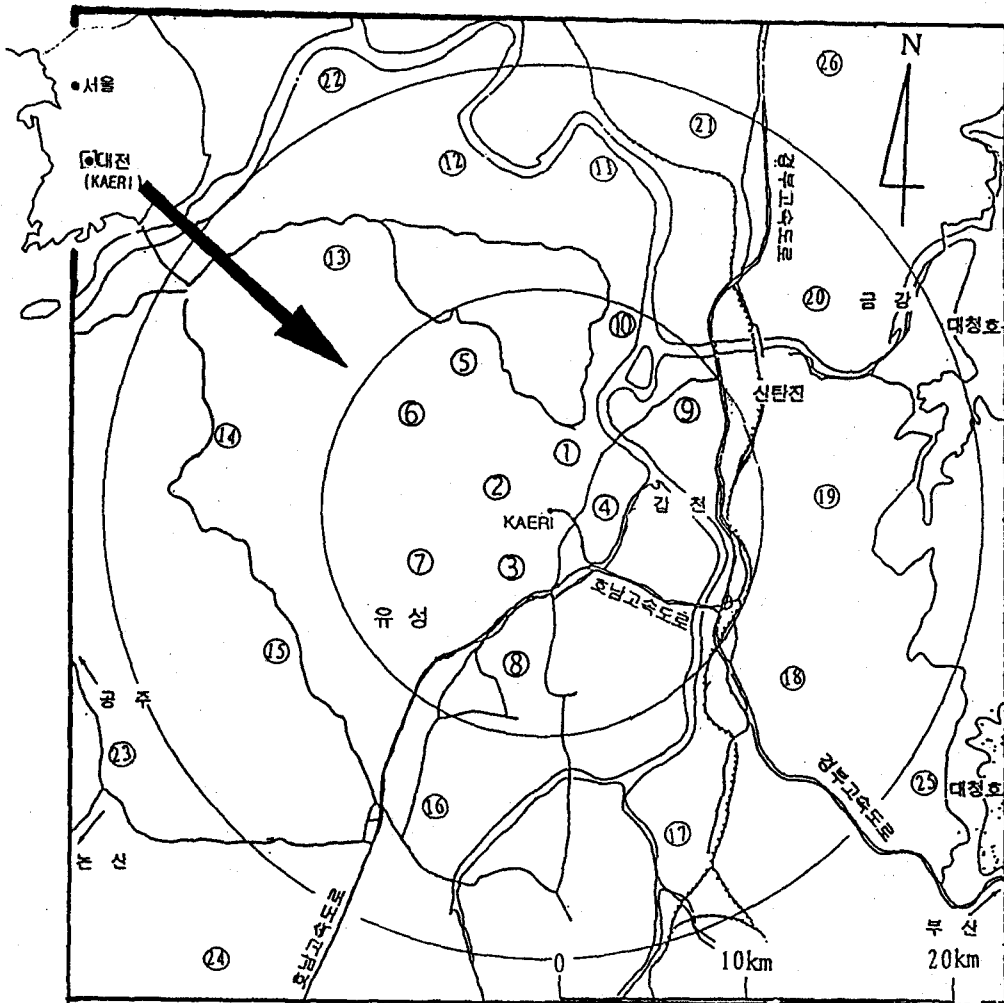


Fig. 1 A map of Taejeon area showing soil sampling sites.

매우 중요하다. Cs-137은 포타슘과 화학적 성질(1족 양이온 원소)이 비슷하여 인체로 쉽게 이동되는데 특히 생식선(gonad)에 쉽게 침적된다. Sr-90은 칼슘과 화학적 성질(2족 양이온 원소)이 유사하여 뼈에 침적되기 쉽고 베타선을 방출하므로 정량시 화학분석이 필요하다. 방사성낙하물인 Cs-137과 Sr-90은 반감기가 다른핵종들에 비해 비교적 길어 현재에도 토양에서 검출되며, 원자로에서 생성되는 핵분열성 물질인 Cs-137과 Sr-90은 방사성낙하물과 절대량을 비교하면 아주 극소량이지만 다른 인공 방사성 동위원소에 비해 방출비가 커서 환경중 존재비가 높다[1]. 따라서 Cs-137과 Sr-90 방사능농도 조사는 원자력시설의 가동으로 인하여 환경에 미치는 영향을 파악하고 사고 이전 해당지역에 대한 기초 자료 확보를 위하여 매우 중요하다.

본 논문에서는 한국 원자력연구소를 중심으로 반경 30km 이내의 26개 지점의 토양에 대하여 Cs-137 및 Sr-90 방사능농도를 조사하였다[4].

시료채취 및 분석방법

시료채취 및 전처리

토양시료 채취 지점을 그림 1에 나타내었다. 한국 원자력연구소(127.0°E, 36.4°N)를 중심으로 반경 30km 이내에 대해 인위적 교란이 없을 것으로 생각되는 미경작지 16지점과 그외 12지점(경작지 제외)을 선정하여 10cm 깊이 이내의 양토 혹은 마사토를 토양채취기로 채취하였다. 채취지점의 연평균 강우량이 1200mm/yr이며, 채취지점 선정은 가

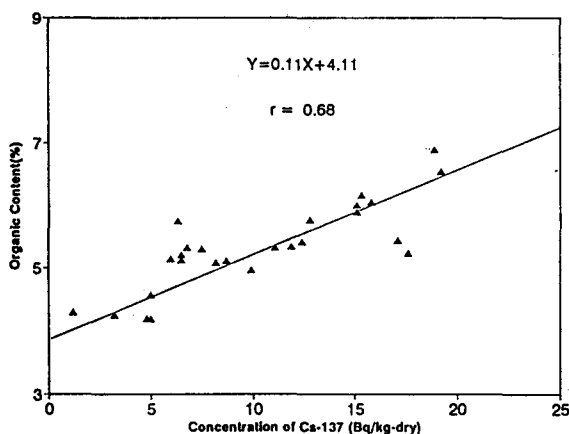


Fig. 2. The effect of organic matter to the concentration of Cs-137 in soils around Taejon area.

능하면 주위에 장애물이 없고 언제나 지면에 노출되어 있으며 침식, 붕괴, 인위적 교란 및 식생등의 영향이 적은 평탄한 곳을 선택했다. 채취한 시료를 전기로에서 105°C로 2일 이상 건조시켜 무게를 달아 수분함량을 구한 다음 건조토양을 전기로에서 450°C로 12시간 가열하여 토양에 존재하는 유기물을 분해한 후 무게를 달아 유기물 함량을 조사했다. 또한 토양시료 4g을 폴리에틸렌 원심분리관에 넣고 10ml 증류수를 가해 1시간 동안 진탕한 다음 원심분리하여 상등액에 대하여 pH meter(Orion Research 701A digital ionalyzer)를 사용하여 pH를 측정하였다. 건조된 시료를 분쇄하여 2mm체를 통과한 시료를 Cs-137 및 Sr-90 분석에 사용하였다.

Cs-137 측정

Cs-137 동위원소분석은 충전된 토양시료 100g을 HPGe 검출기를 장착한 감마스펙트로메타(EG&G, ORTEC 919 series)로 약 80,000초간 측정한 다음 Omnigam Software(EG&G, ORTEC)를 이용하여 방사능 농도를 결정하였다. Cs-137의 최소검출한계치는 시료를 100g, 측정시간을 80,000초 경우 0.2Bq/kg-dry이다.

Sr-90 화학분리 및 측정

감마동위원소 분석 후 토양시료를 전기로에서 500°C로 24시간 가열하여 유기물을 분해한 후 Sr-90 화학분석을 하였다. 본 연구에서는 스트론튬과 칼슘을 완벽하게 분리 할 수 있는 발연질산법(HASL-300)을 사용하여 Sr-90을 정량하였다[5]. 토양시료 100g에 스트론튬 캐리어를 가한 후 농질산으로 토양 매트릭스 성분을 분해하여 스트론튬을 침출 시킨다. 침출된 스트론튬은 Carbonate 침전 및 Oxalate 침전조작으로 무기이온 및 방해핵종을 제거한 다음, 발연질산으로 칼슘이온을 제거한후, 거의 방사평형이 일어날 수 있도록 2주간 방치시켜 스트론튬의 딸핵종인 이트륨을 저준위 베타선 계측기(Tennelec 5100 series)로 베타선을 측정한다. Sr-90의 최소검출한계치는 시료 100g, 측정효율 (Sr-90 standard source 사용)이 40%, 측정시간이 1시간일 경우 0.5 Bq/kg-dry이다.

결과 및 고찰

토양중 유기물 함량과 pH의 영향

각 지점에서 채취한 토양의 유기물함량, pH,

Table. 1. Organic content, pH, concentration of Cs-137 and Sr-90 and soil type in soils around Taejon area.

sampling sites	organic content (%)	pH	Cs-137 (Bq/kg-dry)	Sr-90 (Bq/kg-dry)	soil type
1	5.32	4.74	6.87	1.90	SL
2	5.76	4.87	12.81	6.51	SL*
3	5.42	5.32	12.42	5.60	SL*
4	4.25	4.81	3.22	0.53	SL
5	5.30	5.22	7.51	3.23	SL*
6	6.01	5.56	15.13	8.14	SL*
7	5.12	4.57	6.52	2.12	SL
8	4.29	4.39	2.78	0.72	SL
9	5.11	5.24	8.69	3.85	SL*
10	6.16	4.95	15.32	9.86	SL*
11	5.14	5.11	6.03	3.32	SL
12	5.89	5.47	15.10	7.23	SL*
13	6.89	5.62	18.98	13.9	L*
14	4.56	4.70	5.02	0.51	SL
15	4.62	5.18	1.34	<0.42	SL
16	5.74	5.02	6.31	2.08	SL
17	5.44	4.89	17.12	9.95	L*
18	4.96	5.24	9.91	3.47	SL*
19	5.21	5.32	6.52	2.19	SL
20	5.08	5.09	8.19	3.05	SL*
21	4.20	4.92	4.82	2.83	SL
22	5.34	4.96	11.92	7.86	SL*
23	6.05	4.99	15.84	10.62	SL*
24	6.54	5.53	19.21	8.62	L*
25	5.82	4.51	17.62	10.36	L*
26	5.36	5.21	11.12	5.38	SL*

* : undisturbed soil

SL : sandy loam

L : loam

Cs-137 농도 및 Sr-90 농도에 대한 자료를 표 1에 정리하였다. 토양중 유기물농도가 클수록 Cs-137 농도가 증가함을 보여주었는데 이들의 상관관계는 그림 2에 나타내었다. 이러한 경향은 Sr-90의 경우에서도 비슷한 결과를 보였는데 이것은 Cs-137 및 Sr-90등이 토양에 흡착시 유기물 성분이 방사성 핵종과 토양과 착물 형성을 증가시켜 유기물 함량이 높을수록 Cs-137 및 Sr-90 방사능

농도가 증가된다고 생각된다. 조사지점 토양의 pH 값은 변화폭이 4.39에서 5.60 정도 범위로 Cs-137 및 Sr-90에 대한 pH 의존성을 발견 할 수 없었다.

Sr-90 및 Cs-137 핵종분포

표 1에서 26개 조사지점에 대한 Cs-137 방사능 농도의 변동폭은 최소 1.34Bq/kg-dry에서 최대 19.21Bq/kg-dry 측정치를 나타내었고, 이중 인위

적 교란이 없는 16지점 미경작 토양에 대한 Cs-137의 평균 방사능농도는 14.37Bq/kg-dry 준위였다. 이 수치는 핵무기 실험에 의한 방사성낙하물중 표층토(0~5cm)대한 Cs-137 방사능농도 준위인 15~30Bq/kg-dry 로 보고된 값과[6,7] 비교하면 약간 낮은값을 나타내나 시료채취시 채취깊이(0~10cm)를 고려하면 방사성낙하물 농도범위로 추정된다. Sr-90 경우 변동폭은 최소검출 한계치에서 최대 10.62Bq/kg-dry 측정치를 나타내었으며 이중 미경작토양에 대한 Sr-90 평균 방사능농도는 7.95Bq/kg-dry 준위였다. Sr-90 평균농도도 방사성낙하물에 의한 토양중 Sr-90 평균농도 보고치 10~20Bq/kg-dry[6,7]와 비교하면 약간 낮은값으로 검출되어서 Sr-90도 Cs-137과 마찬가지로 채취깊이를 고려하면 방사성낙하물 농도범위로 추정된다. 이러한 방사성낙하물에 의한 Cs-137과 Sr-90 수치가 약간의 차이를 보이는 것은 북반구 방사성낙하물의 분포가 토양의 성질(pH, 유기. 무기 리간드 함량) 및 강우량에 크게 의존하는등 지역적 특성에 기인 한다고 보고되고 있다[3]. 또한 Cs-137 방사능농도가 Sr-90 보다 높은 원인은 방출량의 차이와 토양흡착 메카니즘으로 설명된다. 핵무기 실험 및 체르노빌 사고로 대기권으로 Sr-90 보다는 Cs-137이 더 많이 방출되었을 뿐만 아니라[1,2] Cs-137 반감기가 Sr-90보다 약간 길어 환경중에 존재비가 높게 검출된 것으로 사료된다. 또 다른 원인으로는 방사성핵종(이온)과 토양과의 반응성에 기인한다. 일반적으로 원자가가 높은 양이온(Sr^{2+})이 원자가가 낮은 양이온(Cs^{+})보다 치환침입력이 크고 양하전수가 같은 양이온 사이에서는 크기가 작은 이온(Sr^{2+})이 큰 이온(Cs^{+})보다 치환침입력이 크다. 따라서 2가 양이온으로 크기가 세슘이온보다 작은 Sr^{2+} 은 토양과의 치환침입력이 세슘보다 커서 빗물등에 의해 심층토로 이동하는 속도가 느릴것으로 예상되나 실제 토양시료에 대한 이동성 실험결과는 정반대이다. 이러한 방사성 핵종과 토양과의 결합성은 원자거나 이온반경 차이 보다는 다른 메카니즘이 더 큰 영향을 미칠것으로 생각된다. 토양중 안정 스트론튬 이온 함량은 세슘이온에 비해 상대적으로 많이 존재한다. 방사성 낙하물이 빗물등에 의해 지표면에 떨어질 경우 방사성 스트론튬 및 세슘은 토양에 흡착된다. 토양중 안정 스트론튬 이온 함량은 세슘이온에 비해 상대적으로 많이 존재하므로 이미 토양입자에 안정 스트론튬 이온이 흡착되어 있어 외부로부터 유입된 방사성 스트론튬은 이온경쟁반응으로

토양에 흡착되지 않고 심층토로 이동하는 경향성이 세슘보다 강해[8] 상대적으로 표층토에 적게 존재한다고 사료된다.

Cs-137/ Sr-90 방사능 농도비 고찰

원자력 연구소 부지 주변 26지점의 토양에 대한 Cs-137/Sr-90 방사능 농도비를 구하면 평균 1.99로 이 수치는 대기권 핵실험에 의한 방출량과 반감기를 고려한 이론적 Cs-137/Sr-90 방사능 농도비인 1.66[9] 보다 높은 수치를 보여준다. 이러한 Cs-137/Sr-90 방사능 농도비 차이는 지역적 특성(강우량 및 토양특성) 뿐만 아니라 앞에서 기술한 토양중 방사성 핵종의 이동성 차이 및 체르노빌 사고로 인한 환경중 Cs-137의 증가로 설명된다. 빗물등에 의해 지상으로 유입된 방사성 낙하물인 Cs-137은 Sr-90보다 토양 흡착성이 강하여 여과(percolation)되지 않고 표층토에 의해 Sr-90보다 많이 분포하여 Cs-137/Sr-90 방사능 농도비가 높다. 체르노빌 사고로 인한 환경중 Cs-137증가는 외국 여러 논문에서 보고 되었다.[10,11]. Baeza등이 스페인 caceres 지역 표층토(0~3cm)에 대한 Cs-137/Sr-90 방사능 농도비는 3.6으로 보고했는데[12] 이 수치는 이론적 Cs-137/Sr-90 방사능 농도비(1.66)보다 상당히 높다. 또한 Winkelmann등은 독일 Munich지역 토양에 대한 Cs-137 및 Sr-90 분포를 조사하였는데 체르노빌 사고전인 1980년의 Cs-137/Sr-90 방사능비는 1.75 수치를 보였으나 체르노빌 사고직후인 1987년의 Cs-137/Sr-90 방사능비는 40정도로 검출되었다고 보고했다[13]. 유럽지역과 우리나라의 Cs-137/Sr-90 방사능비 차이는 지역적 특성으로 설명된다. 체르노빌 사고로 인해 Sr-90 보다 상대적으로 많은양의 Cs-137이 대기권으로 방출되었는데[2] 지리학적으로 우리나라 보다는 유럽지역에 큰 영향을 주어 Cs-137 분포가 우리나라 보다 높기 때문으로 사료된다. 따라서 체르노빌 사고로 인해 대덕 원자력 연구시설 주변 Cs-137 분포가 조금은 증가되었을 것으로 생각되나 대전지역의 Cs-137/Sr-90 방사능비가 체르노빌 사고이전의 Munich지역과 비슷함을 볼때 원자력연구소 부지 주변 토양에 존재하는 대부분의 Cs-137 및 Sr-90은 과거 핵실험에 의한 방사성 낙하물로 사료된다. 표 1의 자료로 부터 Sr-90 방사능농도에 대한 Cs-137 방사능농도 관계를 그려보면 그림 3와 같이 되는데 이 그림에서의 상관 관계식은 아래와 같이 표시 될 수 있다.

$$C_c = 1.331x_{Cs} + 3.352$$

C_c : 토양중의 Cs-137의 비방사능,
Bq/kg-dry soil

x_{Cs} : 토양중의 Sr-90의 비방사능, Bq/kg-dry soil

그림 3 및 윗식으로 부터 Sr-90 방사능 농도에 대한 Cs-137 방사능 농도비는 일정한 상관 관계를 갖고 있어 Sr-90 방사능이 높은 지역은 Cs-137 방사능도 높게 검출됨을 보여주고 있다.

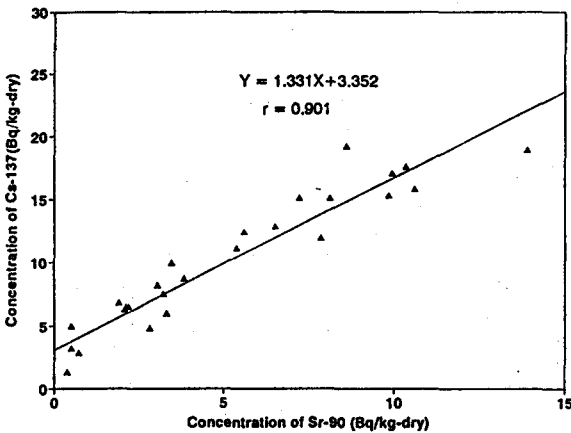


Fig. 3. The concentration of Cs-137 vs. the concentration of Sr-90 in soils around Taejon area.

결론

대전지역의 26개 지점중 유기물 함량이 높은 토양에서 Cs-137과 Sr-90의 농도가 약간 높은 경향을 보였으며 Cs-137과 Sr-90의 농도에 대한 pH 효과는 관찰 할 수 없었다. 미경작지 토양에 대한 Cs-137 및 Sr-90의 평균 방사능농도는 14.37Bq/kg-dry와 7.95Bq/kg-dry 수치로 핵실험에 의한 방사성낙하물 농도와 유사한 값을 나타내었다. 미경작지를 포함한 26개 지점에서 Cs-137과 Sr-90의 농도비는 평균 1.99 정도로 Cs-137의 침적 농도가 Sr-90의 경우 보다 두배정도 높음을 알 수 있었다. 한국 원자력연구소 부지 주변 토양에 존재하는 Cs-137과 Sr-90은 과거 핵실험에 의한 방사성낙하물로 판명되며 체르노빌 사고에 의한 영

향은 크지 않은것으로 사료된다.

참고문헌

1. 山縣 登, 방사성 물질, 환경오염물질 시리즈, pp. 15~18 일본화학회, 동경 (1976).
2. I. Shigematsu, et al., *The International Chernobyl Project*, ISBN 92-0-129291-4, pp. 69~70 IAEA, Vienna (1991).
3. NEA Group of Expert, "The Environmental and Biological Behaviour of Transuranium Elements," Nuclear Energy Agency, 1, 27~33 (1981).
4. 이창우 외 연구원자로주변 환경방사선 조사, KAERI /RR-1451 /94 (1995).
5. Herbert L. Volchok, *EML Procedures Manual*, Environmental Measurements Laboratory U. S. Department of Energy (1983).
6. E. P. Hardy, et al., *Depth Distribution of Global Fallout Sr-90, Cs-137 and Pu-239*, 240 in Sand Loam Soil, USAEC Report HASL-286 (1974).
7. 岩島清, 환경방사선 모니터링, pp. 122~130, 원자력안전연구협회 (1987).
8. Merrill Eisenbud, *Environmental Radioactivity*, pp. 83~120, Academic Press, INC. (1987).
9. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Report to the General Assembly (1982).
10. W. Schimmack, et al., "Initial Rates of Migration of Radionuclides from the Chernobyl Fallout in Undisturbed Soils," *Geoderma*, 44, 211-218 (1989).
11. Kasper G. Andersson & Jorn Roed, "The Behaviour of Chernobyl Cs-137, Cs-134 and Ru-106 in Undisturbed Soil," *J. Environ. Radioactivity* 22, 183-196 (1994).
12. A. Baeza, et al., "Surface and Depth Fallout Distribution of Cs-137 and Sr-90 in Soils of Caceres(Spain)," *J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters*, 175(4), 297-316 (1993).
13. WinKelmann, et al., *Radioactivity Measurement in Germany After the Chernobyl Accident*, ISH-HEFT 116, pp. 43~44, Neuherberg (1987).