

## 포항 및 대전지역 강수의 삼중수소 함량

### Tritium Contents in Precipitation in Pohang and Taejon

고용권(Yong-Kwon Koh) · 배대석(Dae-Seok Bae) · 김천수(Chun-Soo Kim) · 김건영(Geon-Young Kim)

**요약:** 삼중수소는 물분자중 수소원소의 동위원소로서 물의 유동연구에 가장 이상적인 추적자로서 활용된다. 국내에서 포항지역 강수중 삼중수소 함량은 1961년-1976년까지는 IAEA에서 분석되었고, 1987년도부터 현재까지 한국원자력연구소에서 분석하고 있다. 강수중 삼중수소함량은 핵실험의 영향으로 1963년에 1,940 TU까지 증가된 바 있으나, 그후 지속적으로 감소되어 현재는 약10TU로 핵실험이전 수준으로 낮아졌다. 이러한 삼중수소 분석결과는 지표수-지하수 상관관계 해석 및 지하수의 연대측정등 국내 수문학연구에서 매우 중요한 입력자료로 활용될 것이다. 분석결과의 신뢰성은 국제기관과의 교차분석을 통해서 확인되었다.

**Abstract:** Tritium, a radioisotope of hydrogen, is a constituent of water molecules and, therefore, is a ideal water tracer in hydrology. The tritium level of the precipitation in Korea has been monitored at the Pohang station from 1961 to 1976 by IAEA and has been analyzed from 1987 to present by KAERI. The tritium contents of the precipitation were recorded up to about 1,940 TU owing to world-wide nuclear testing in 1963. The contents have decreased and in present are about 10 TU, of which values are similar to those in pre-thermonuclear period. These data can be usefully applied to hydrological studies such as interpretation of relationship between groundwater and surface water and dating of groundwater.

#### 서론

1961년 이래 국제원자력기구(IAEA)/세계기상기구(WMO)에서는 수문학 및 기후학적인 목적으로 전세계 93개국내 550개 지점에서 강수(precipitation)내 환경동위원소( $^{18}\text{O}$ , D, Tritium)의 변화를 체계적으로 분석하여 왔다. 우리나라의 경우 1961년이 후 1976년까지 세계 강수의 동위원소 감시망에 포항지역(Lat., 48.25N; Long., 16.37E; Alt., 203 msl)이 포함된 바 있다 (IAEA, 1969, 1970, 1971, 1973, 1975, 1979, 1983a). 그 후, IAEA 세계강수의 동위원소자료가 충분히 축적되었다고 인식 되므로써, 포항지역이 동위원소 감시망에서 제외되어 국내 강수의 동위원소자료 축적이 일시 중단되었다가, 다행히 한국원자력연구소(Korea Atomic Energy Research Institute)에서 1987년부터 현재까지 KAERI내 강수중 삼중수소분석을 자체적으로 수행하고 있다. 또한, 최근에 고기후환경연구 및 대기순환모델링(GCM)의 검증 및 향상과 관련하여 강수의 동위원소 자료의 중요성이 다시 대두됨에 따라 IAEA에서는 강수의 동위원소 감시망을 강화하여 전세계 강수의 동위원소감시관리망(Global Network for Isotopes in Precipitation, GNIP)을 운영하기로 하였다. 이에 한국원자력연구소에서는 국내지역중 청주지역(Lat. 127.46E, Long. 36.62N, Alt. 62 msl)을 새로운 강수 시료채취지점으로 정하여 GNIP에 참여하고 있다.

삼중수소(Tritium)는 Oxygen-18, Deuterium과 함께 물을 구성하는 동위원소로서 이의 특성해석은 물의 거동 그 자체를 반

영하므로 물의 유동연구에 가장 이상적인 추적자로 활용될 수 있고, 또한 삼중수소는 12.43년의 반감기를 가지므로 그에 대한 연구는 지하수의 연대측정을 가능하게 한다. 국외에서는 물의 산소 및 수소동위원소를 위시하여  $^{13}\text{C}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{34}\text{S}$ ,  $^{15}\text{N}$  등의 환경동위원소 뿐만 아니라  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ,  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ,  $^{37}\text{Cl}$ ,  $^{11}\text{B}$  등 각종 동위원소를 물의 순환과정연구에 적용하고 있으며, 수자원의 개발 및 관리에도 활용하여 많은 성과를 거두고 있다 (Clark and Fritz, 1997; IAEA, 1981; Fritz and Fontes, 1980; 1986; 1989). 국내의 경우 최근에서야 지하수관련 연구에 동위원소가 활발하게 이용되고 있으며 (고용권 외, 1999a, 1999b; Koh *et al.*, 1998; Yun *et al.*, 1998). 물의 순환과정연구에서 시발점이 되는 강수에 대한 산소 및 수소안정동위원소의 분석결과가 제시된 바 있다 (김규환과 中井信之, 1988; 이광식의, 1997; 이광식과 장병욱, 1994; 이광식과 정재일, 1997; 이광식과 이창복, 1999; Lee *et al.*, 1999). 강수에 대한 삼중수소 분석결과를 지하수의 연대측정에 적용하기 위한 단기적인 연구자료가 보고된 바는 있지만 (김계남 외, 1995; 오진석과 김선준, 1995), 체계적인 분석결과는 제시하지 못하고 있다. 따라서, 지하수연구와 관련하여 삼중수소를 적용하기 위해서는 입력자료로 활용되는 강수내 삼중수소함량에 대한 장기적이고도 체계적인 분석자료가 요구된다. 본 논문에서는 IAEA에서 발표된 포항지역 강수중 삼중수소의 분석자료와 더불어 그간 한국원자력연구소에서 채수된 월별강수의 삼중수소함량을 제시하여 향후 지하수 연구에 기초자료로 활용할 수 있게 하고자 한다.

\* 한국원자력연구소(Korea Atomic Energy Research Institute, P.O. Box 105, Yuseong, Taejon 305-600, Korea)

## 삼중수소의 기원 고찰

### 자연적 생성

자연적으로 삼중수소는 우주선(Cosmic ray)에 의해 생성된 중성자와 대기중  $^{14}\text{N}$ 과의 반응에 의해 주로 생성되며( $^{14}\text{N} + n \rightarrow ^3\text{H} + ^{12}\text{C}$ ), 이론적으로 계산된 대기중 평균생성율은 0.25 atoms/cm<sup>2</sup>/s이다(Lal and Peters, 1967; Ferronsky and Polyakov, 1982). 이로 인해 생성되어 지구상에 안정상태로 남아있게 되는 삼중수소의 양은 3~10 kg으로 추정된다(Ferronsky and Polyakov, 1982). 그러나 실제 성층권에서 측정된 삼중수소함량은 계산된 결과보다도 높은 값을 보여 직접적으로 우주에서 유래된 삼중수소가 포함되었을 가능성도 제기된 바 있다(Jacobs, 1968). 일반적으로 삼중수소는 성층권에서 2/3가 생성되고 대류권에서 1/3이 생성되며, 생성된 삼중수소는 HTO형태로 산화되어 강수를 통해 지표로 이동된다(Burnham, 1988). 따라서 위도에 따라 성층권과 대류권으로 이동되는 삼중수소의 양이 다르기 때문에 강수내 삼중수소 함량에는 위도효과가 나타나게 된다. 이에 의해 북반구에서는 10~20 TU를 보이며, 남반구에서는 10 TU 이하를 보인다(Buttlar and Libby, 1955; IAEA, 1983b).

### 핵실험

삼중수소는 모든 핵실험에서 생성되며, 이중 핵분열실험은 0.07 kg/Mt의 삼중수소를 방출하고, 핵융합실험은 약 0.7~5.0 kg/Mt의 삼중수소를 방출한다(Libby, 1963; Miskel, 1973). 1952년부터 1962년까지 미국, 구소련, 영국에서의 핵실험으로 인하여 대기중에 600 kg의 삼중수소를 발생시켰으며, 이와 같은 핵실험으로부터 생성된 삼중수소에 의해 대기중 삼중수소 농도는 자연적으로 발생하는 삼중수소에 비해 100배에서 1,000배까지 증가하게 되어, 1963년에는 캐나다에서 강수중 삼중수소함량이 약 10,000 TU를 기록한 바도 있다(Thatcher and Payne, 1965). 1963년부터 시행된 핵실험금지조약(Limited Test Ban Treaty)으로 인하여 대기중 삼중수소의 발생량은 크게 감소하게 되었다. 이후 1967년에서 1980년 기간동안 중국과 프랑스에서 실시된 핵실험에 의해 발생한 삼중수소의 양은 약 20 kg 정도였고, 1980년 이후에는 핵실험의 저지효과로 이에 의한 대기중의 삼중수소의 양은 급격히 감소하게 되었다(Ferronsky and Polyakov, 1982; Rozanski, 1991). 핵실험시 높은 에너지의 발생으로 인해 생성된 삼중수소중 3/4정도는 성층권으로 유입되고, 이중 75%는 북반구 성층권으로, 25%는 적도부근의 성층권으로 이동된다. 대부분 핵실험은 북반구에서 진행되었으므로 남반구에서의 삼중수소 유입은 거의 나타나지 않는다. 또한 해양에 의한 삼중수소 감소효과(sink effect)로 해양이 넓게 분포하는 남반구가 대륙보다는 삼중수소함량이 낮게 나타난다(Rozanski, 1991).

### 원자력시설운영

원자력발전소 및 원전핵연료재처리시설에서는 HT, HTO, CH<sub>3</sub>I, C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>I, hydrocarbons 등의 가스형태 폐기물과 냉각수로부터 삼중수소가 발생된다. 특히, 원자력발전소에서는 중성자

에 의한  $^2\text{H}$ , B, Li의 활성화반응과정에서 다량의 삼중수소가 생성되며, 원자로방식중 중수로형(Heavy Water Reactor)이 가장 많은 삼중수소를 발생시킨다. 1983년에서 1985년까지 원자력시설에 의해 대기중에 방출된 삼중수소의 양은  $5.3 \times 10^{15}$  Bq/year이었고, 1988년에는  $8.5 \times 10^{15}$  Bq으로 보고된 바 있다. 이중 70%는 중수로형 원자력발전소에서 발생되었으며, 대부분은 중수로형 발전소가 밀집된 캐나다 서부에 국한되었다(Rozanski, 1991). 원자력발전소를 통해 대기중 발생한 삼중수소의 양은 전체 삼중수소의 10%에 해당되며, 대부분은 국지적으로만 나타난다. 국내에서는 월성원자력발전소가 중수로형으로 1, 2, 3호기가 현재 가동중에 있으며, 발전소 주변 지표수나 지하수에서는 비교적 높은 삼중수소함량을 보여주고 있다(고용권, 미발표자료). 액체상태로의 삼중수소 방출은 가스형태와 양적으로 비슷하지만, 대부분 경수로(Pressurized Water Reactor)형 발전소와 재처리시설에서 발생된다. 이로 인한 삼중수소 방출은 지표수나 지하수와 혼합하게 되어 대기순환계에는 매우 미미한 영향을 미친다(Rozanski, 1991).

군사시설에 의해서도 삼중수소가 방출되며, 미국에서 발표된 바에 의하면 매년 5 kg의 삼중수소를 대기중으로 방출되는 것으로 추산되었다. 이는 핵부기 보유 100 kg에 해당된다. 핵분열시험원자로나도 규모는 비록 작지만, 지속적으로 증가하는 추세에 있기 때문에 삼중수소의 생성기원에 있어서 앞으로는 중요한 원인으로 작용할 것으로 보인다. 최근 보고에 따르면, 시험원자로나에 의한 삼중수소 발생현황은 2.2 kg에서 5.7 kg으로 이는 발전소의 5~7 kg/GWe에 해당된다. 이를 통한 삼중수소 발생은  $8.0 \times 10^{14}$  Bq/GWe/year로 평가되었다(Rozanski, 1991). 참고적으로 국내 가압중수로형인 월성발전소에서는 발전용량이 각 약 700 KWe/year인 3개의 원자로가 운영중에 있다.

### 소비성용품

다양한 계측기 및 시계부품에 사용되는 발광성페인트와 야광물질에도 상당한 양의 삼중수소가 포함되어 있다. 삼중수소를 포함하는 페인트내에는 삼중수소가 중합체의 형태로 존재한다. 시계로부터 방출되는 삼중수소의 양은  $1.1 \times 10^7$  Bq/day 정도이다. 최근에는 인으로 표면처리된 튜브에 삼중수소가스를 채워넣는 형태의 광원이 제작되었고 이로 인한 삼중수소의 발생량은 370 Bq/day이하로 알려져 있다(Rozanski, 1991). 실질적으로 소비성용품에서 발생하는 삼중수소의 양을 평가하는 것은 어렵지만, 미국에서 1979년에  $4.0 \times 10^{16}$  Bq(105 g)의 삼중수소가 이로부터 발생되었다고 발표된 바 있고(Combs and Doda, 1979), 1970년대 독일에서  $2.2 \times 10^{16}$  Bq, 스웨덴에서  $1.44 \times 10^{16}$  Bq가 발생되었다고 보고된 바 있다. 소비성용품으로부터의 삼중수소는 대부분 폐기물로서 처리, 처분된 후 발생된다. 평균소비성품의 수명을 5년으로 본다면, 상당한 양의 삼중수소가 소각처리 과정에서 직접 대기순환계로 방출될 수 있으며, Rozanski (1991)는 대부분 소각처리장이 인구밀집지역 주변에 있음을 고려하여 대도시 주변에서 이로 인한 삼중수소가 발생되고, 이는 수  $\times 10^{18}$  Bq에 해당된다고 추정한 바 있다.

시료채취 및 측정

시료채취

강수는 별도로 제작된 시료용기(50 l)에 깔대기(직경 50 cm)를 사용하여 월초부터 월말까지 한달간 누적시켜 채취하였다. 강수시료의 증발은 동위원소의 분별작용을 일으키므로, 이를 피하기 위해 강수채수용 용기내에는 파라핀오일을 첨가하여 증발을 최대한 방지하였다. 시료용기벽을 통한 증발을 최소화하고 외부광원을 차단하기 위해 알루미늄 박막지로 시료용기를 포장하였다. 강수량은 별도의 강수량측정기를 사용하지 않고 기상관측소의 관측자료를 이용하였으며, 한달간 누적된 강수의 무게를 달아 이의 값을 참고하였다.

Table 1. Comparison of tritium measurements by KAERI and ANSTO

Sample No.	KAERI	ANSTO
K-1	0.7±0.5	0.3±0.2
K-2	13.1±0.6	13.1±0.6
K-3	39.4±0.8	39.3±1.0
K-4	115.3±1.3	116.0±3.0

삼중수소 분석

삼중수소는 12.43년의 반감기를 가지며 β-붕괴( $E_{max}=18$  keV)를 하여 최종적으로  $^3\text{He}$ 를 생성하는 방사성동위원소이다. 자연수중의 삼중수소 함량은 TU(Tritium Unit)로 표시하고, 1 TU는 수소원자 18개당 삼중수소 1개를 의미한다. 1 TU는 방사능

Table 2. Tritium concentrations (TU) and precipitations (mm) in Korea from 1961 to 1997.

Year/Month	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
1961	(8)	(24)	(121)	(57)	(107)	(33)	28.6 (220)	18.2 (266)	56.0 (162)	56.0 (247)	46.5 (114)	(110)
1962	(30)	(5)	(34)	(58)	(31)	(45)	(96)	236.0 (96)	224.0 (186)	205.0 (42)	(102)	(13)
1963	(3)	(1)	1122.0 (33)	1410.0 (98)	1699.0 (87)	1940.0 (374)	952.0 (184)	806.0 (198)	871.0 (25)	766.0 (24)	(14)	883.0 (14)
1964	968.0 (79)	715.0 (69)	1267.0 (59)	868.0 (176)	1234.0 (71)	1330.0 (92)	495.0 (264)	325.0 (43)	434.0 (208)	352.0 (17)	249.0 (20)	262.0 (40)
1965	752.0 (25)	637.0 (13)	431.0 (28)	865.0 (63)	503.0 (93)	510.0 (5)	310.0 (447)	281.0 (90)	310.0 (90)	201.0 (42)	104.5 (131)	(15)
1966	(2)	283.0 (50)	208.0 (160)	422.0 (49)	384.0 (83)	269.0 (100)	364.8 (141)	190.6 (105)	144.6 (68)	106.4 (156)	73.7 (31)	92.4 (13)
1967	150.0 (24)	131.0 (27)	(54)	(92)	(35)	215.3 (124)	146.0 (122)	200.8 (113)	126.2 (101)	95.0 (96)	56.8 (64)	56.1 (2)
1968	(1)	169.1 (2)	167.7 (38)	164.4 (24)	151.7 (56)	216.8 (49)	110.4 (200)	34.6 (199)	90.2 (139)	74.2 (78)	(14)	(5)
1969	107.9 (54)	75.8 (62)	78.4 (16)	81.0 (139)	161.9 (70)	195.1 (80)	58.4 (185)	147.5 (126)	38.6 (408)	46.0 (2)	54.8 (28)	(13)
1970	(7)	65.3 (63)	(18)	(57)	(118)	79.4 (219)	69.0 (524)	59.9 (201)	44.0 (136)	45.1 (39)	46.2 (18)	66.0 (29)
1971	62.7 (46)	66.7 (4)	128.4 (37)	116.6 (49)	94.8 (70)	79.5 (207)	70.0 (140)	28.7 (190)	82.3 (57)	52.9 (16)	52.4 (7)	50.0 (3)
1972	33.7 (79)	33.4 (89)	63.4 (162)	80.9 (66)	48.3 (136)	138.9 (55)	28.7 (226)	17.9 (288)	40.3 (221)	35.3 (14)	21.7 (105)	(40)
1973	(95)	25.4 (17)	61.4 (2)	42.4 (101)	37.0 (118)	25.5 (69)	54.5 (88)	31.0 (58)	20.7 (191)	19.9 (135)	30.7 (10)	23.4 (3)
1974	20.8 (50)	48.5 (54)	51.7 (51)	33.8 (101)	28.3 (118)	29.0 (69)	29.8 (479)	36.9 (110)	45.2 (57)	40.5 (87)	39.0 (11)	27.0 (56)
1975	(25)	26.3 (25)	39.3 (107)	41.5 (111)	43.9 (83)	44.4 (102)	15.1 (269)	11.1 (51)	12.4 (135)	(124)	(142)	(36)
1976	(25)	(44)	10.7 (89)	24.3 (114)	(139)	(198)	18.4 (248)	(165)	(205)	(73)	(44)	(39)
1987	14.2 (73)	27.7 (61)	15.3 (40)	18.6 (55)	8.3 (84)	16.0 (136)	8.8 (682)	10.7 (580)	8.0 (19)	12.8 (80)	25.9 (68)	12.8 (3)
1988	24.1 (10)	25.9 (5)	27.6 (57)	34.2 (60)	30.2 (59)	8.8 (62)	22.8 (444)	14.0 (154)	25.3 (19)	17.6 (2)	10.0 (19)	13.4 (30)
1989	8.6 (90)	12.6 (82)	12.3 (77)	19.1 (22)	22.3 (52)	12.0 (170)	5.5 (512)	6.3 (106)	11.4 (324)	8.5 (35)	10.7 (51)	10.2 (18)
1990	5.8 (73)	6.0 (111)	10.2 (59)	15.7 (88)	10.9 (113)	6.1 (278)	7.3 (335)	5.1 (215)	4.9 (152)	9.8 (4)	8.3 (49)	9.5 (19)

Table 2. (continued)

Year/Month	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
1991	7.6 (23)	10.3 (57)	7.3 (89)	11.0 (69)	8.2 (50)	4.8 (169)	5.8 (275)	8.5 (139)	5.7 (218)	12.6 (0)	12.0 (0)	11.1 (0)
1992	10.1 (13)	9.2 (27)	13.3 (47)	12.8 (120)	13.2 (92)	10.4 (24)	7.5 (188)	3.9 (232)	6.4 (164)	13.3 (34)	7.1 (47)	8.2 (49)
1993	12.7 (8)	12.9 (83)	14.7 (40)	13.5 (65)	7.4 (155)	6.0 (222)	8.6 (296)	7.6 (364)	7.3 (142)	10.6 (39)	6.5 (94)	7.7 (25)
1994	16.4 (18)	13.2 (17)	13.9 (47)	7.1 (39)	6.0 (138)	5.1 (115)	5.6 (105)	4.3 (146)	12.6 (38)	12.6 (145)	10.3 (24)	3.9 (26)
1995	9.8 (24)	12.0 (17)	14.1 (34)	11.3 (55)	9.8 (62)	5.7 (34)	3.8 (155)	3.9 (642)	10.3 (53)	6.9 (36)	9.3 (18)	9.9 (7)
1996	13.5 (33)	72.4 (4)	12.7 (138)	37.5 (50)	18.7 (63)	8.0 (411)	4.7 (258)	16.1 (114)	46.2 (11)	45.2 (91)	35.6 (77)	17.3 (29)
1997	16.9 (16)	11.3 (51)	15.9 (37)	14.9 (55)	10.1 (201)	11.9 (268)	6.8 (424)	4.6 (464)	18.9 (30)	19.3 (8)	74.3 (168)	(45)

단위로 0.118Bq(7.2 dpm 또는 3.2 pCi)에 해당된다. 자연수내에는 삼중수소가 극미량 포함되어 있어, 농축과정을 거쳐야만 분석이 가능하다.

**삼중수소농축**

삼중수소 농축셀은 전기분해를 통해 시료 600 g을 처리하여 최종적으로 20 g으로 농축될 수 있도록 고안되었다. 셀은 2개의 음전극과 1개의 양전극으로 구성되며, 규격은 각각 30.5 × 4.4 × 0.1 cm, 30.5 × 4.4 × 0.25 cm이다. 농축전에 모든 시료는 증류하였으며, 전극의 부식을 방지하기 위해 Sodium Peroxide (Na<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) 0.67%를 첨가하였다. 농축되는 동안 시료의 증발현상을 막기 위해 10% Ethylene Glycol이 첨가된 -1~0°C 조건의 항온조에서 농축하였다. 모든시료는 전기분해 전후로 무게를 재어 농축된 양을 계산하였으며, 전기분해후 Sodium Peroxide는 20%까지 증가되므로, 이에 의한 분석오차를 제거하기 위해 농축과정을 거친 시료에 CO<sub>2</sub>(g)를 퍼징하여 탄산나트륨형태로 침전시켰다. 이를 다시 증류하여 Cocktail 용액(Ultra Gold LLT, Packard사)을 첨가하여 액체섬광계측기(Parkard 2770 TR/SL)로 측정하였다(Calf, 1976).

**삼중수소계측**

농축된 시료 10 g을 취하여 Cocktail용액 10 ml와 혼합하여 액체섬광계측기(Parkard 2250과 Packard 2770TR/SL)로 계측하였다. 표준시료는 NBS standard no. 4926를 사용하였으며 (0.404 × 10<sup>4</sup> disintegrations/s/g on September 3, 1979), 모든 시료는 500분간 계측되었다. 삼중수소분석결과는 TU(Tritium Unit)로 표시되며, 다음과 같이 계산된다. 각 시료의 채취시기와 분석시기 차이로 생기는 오차는 삼중수소반감기로부터 보정되었다.

$$TU = \frac{[(\text{count rate(cpm)} - \text{background(cpm)}) \times 10^5]}{[\text{weight of sample counted(g)} \times \text{efficiency(\%)}] \times 7.19 \times \text{enrichment}}$$

삼중수소분석의 신뢰성을 확보하기 위하여 국제적으로 동위원소분석에 인정을 받고 있는 호주 ANSTO(Australian Nuclear

Science and Technology Organization)와의 교차분석을 수행하였다. 교차분석 결과는 Table 1과 같으며, 분석의 범위로 볼 때, 매우 잘 일치하는 분석결과를 보여준다. 한국원자력연구소는 이 분야에 대한 국가공인기관으로서 정기적인 검사로 분석 결과의 신뢰성을 확보하고 있다.

**분석결과 및 고찰**

포항 및 한국원자력연구소에서의 강수의 삼중수소 분석결과는 Table 2와 같다. 1961년부터 1976년까지는 IAEA에서 분석된 자료이고, 1987년 이후 자료는 한국원자력연구소에서 직접 강수를 분석하여 얻은 자료이다. 북반구 강수내 삼중수소분포의 기준이 되는 오스트리아 비엔나의 강수 및 우리나라와 인접한 일본 동경자료와 비교하기 위하여 이를 포항 및 한국원자력연구소지역강수의 삼중수소 함량과 함께 도시하였다(Figure 1).

연도별 강수내 삼중수소 함량은 1960년대 초반 미국, 구소련, 영국에서 집중된 핵실험의 영향으로 1963년 6월에 최대치(1,940 TU)를 보였으나, 전반적으로 현재까지 계속 감소하는 경향을 보인다. 현재의 값은 1960년대 핵실험 이전의 삼중수소농도(약 10 TU)와 유사하다. 1996년부터는 한국원자력연구소지역 강수내 삼중수소함량이 다소 높은 값을 보이는데(<74.3 TU), 이는 1996년부터 가동된 한국원자력연구소 '하나로 다목적연구용원자로'의 가동에 기인된 것으로 판단된다. 하나로원자로는 30MW급의 개방수조형의 연구용원자로로서 20% 농축우라늄을 사용하여 핵분열연쇄반응시 방출되는 높은 중성자속(5 × 10<sup>14</sup> n/cm<sup>2</sup>/sec)을 이용하여 핵연료 및 신소재의 개발과 시험평가, 동위원소생산, 극미량분석등에 활용되는 다목적연구용원자로이다.

계절에 따른 강수내 삼중수소함량을 살펴보면, 1987-1997년의 경우 다소 상이한 결과를 보이거나 대체적으로 4월에서 6월 사이에 다소 높은 값을 보인다(Figure 2). 이는 북반구 강수내 나타나는 일반적인 현상으로서 봄철에 나타나는 기온상승에 따른 대기상승현상에 기인한다(Rozanski, 1991). 성층권은 삼중수소의 주 저장지(reservoir)로서 추운겨울에 이은 봄철의 기온상승은 고위도지방에서 성층권과 대류권사이에 있는 권계면의

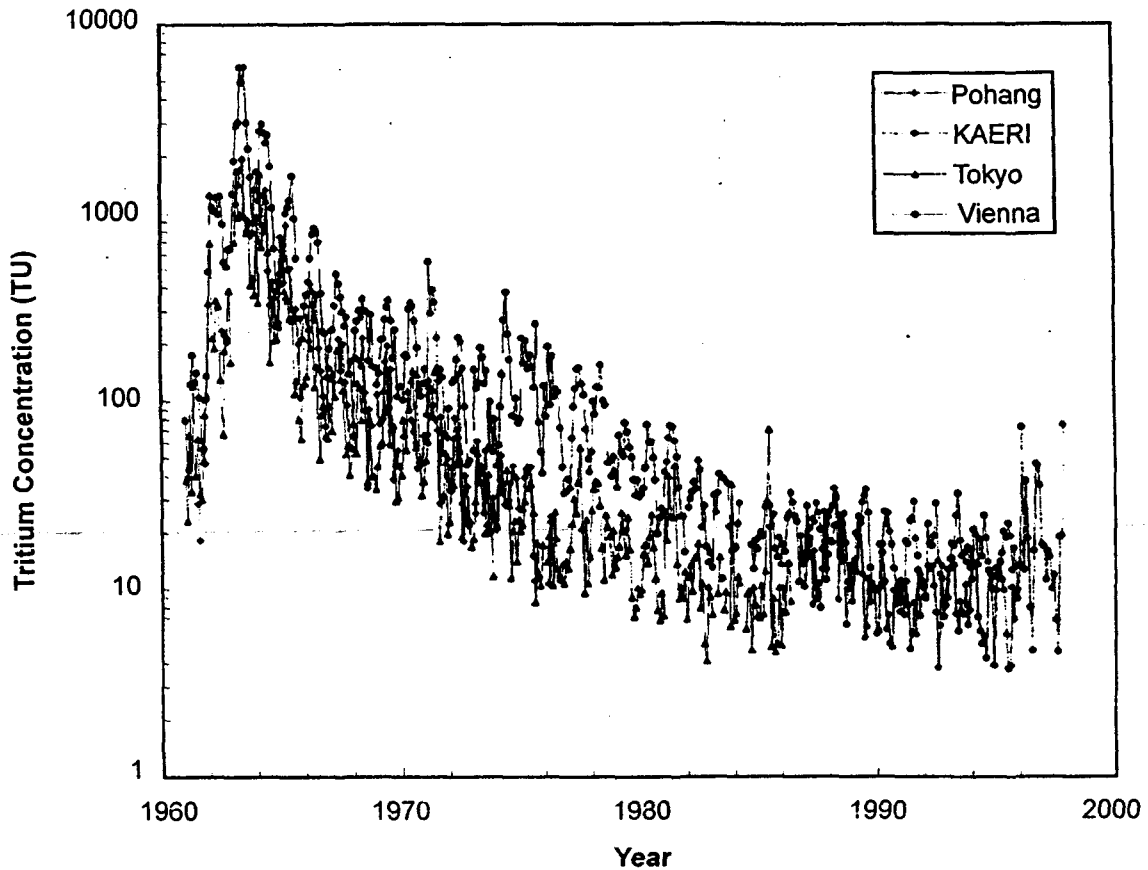


Figure 1. The trends of tritium concentration of monthly precipitations collected in Pohang- KAERI, Tokyo, and Vienna. All of the sites belong to the IAEA Network of Isotopes in Precipitations.

상승을 유발시켜 성층권내 삼중수소가 대류권으로 이동하게 되며, 대류권으로 유입된 삼중수소는 HTO를 형성하여 강수로서 지표에 유입하게 된다. Ehhalt(1973)은 성층권에서 지표로의 HTO의 평균이동시간을 약 30일로, 대류권에서 HTO의 평균체류시간을 10일로 추정 한 바 있다. 삼중수소의 분포는 권계면 상승이 뚜렷한 극지방같은 고위도지방에서 높게 나타나는 소위 위도효과(Latitudinal Effect)를 보이게 된다(Figure 1 참조). 이러한 위도효과는 한반도 지표수에서도 보고된 바 있다. Ahn and Koh(1995)에 따르면, 북쪽지방으로 갈수록 지표수의 삼중수소함량이 증가하는 경향을 보인다(제주도, 14 TU; 백두산, 40 TU; 1991년 자료).

장기적인 강수의 삼중수소분석결과는 지하수의 연대측정, 심부지하수의 혼합 등 지하수관련연구에 있어서 입력자료 및 기초자료로 활용된다. 상기 삼중수소분석자료를 수문학에 입력자료로 적용하기 위해서는 강수량변화에 따른 효과를 고려해야 하므로 강수량 가중평균값(Weighted Means)를 사용하여야 한다. 가중평균값은 다음과 같이 계산되었으며, 결과는 Table 3과 같다.

$$M_w = \frac{\sum_{i=1}^n P_i C_i}{\sum_{i=1}^n P_i}$$

P=precipitation, C=concentration(TU) for tritium

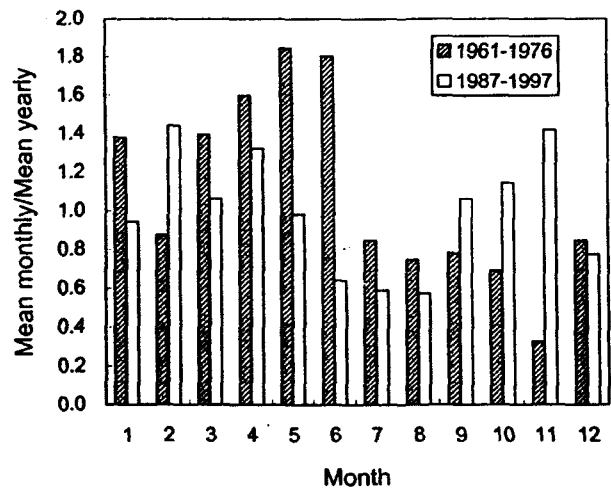


Figure 2. Ratios of monthly arithmetic mean to yearly arithmetic mean values of the tritium content of precipitations collected in Pohang-KAERI. Two periods, 1961-1976 and 1987-1997, are compared.

1977년부터 1986년 사이 한반도내 강수의 삼중수소 함량은 서울 및 제주지역 강수에 대한 약간의 자료외에는 전무하여 같은 기간내 삼중수소의 가중평균값은 오스트리아 비엔나 강수 자료와의 상관관계분석을 통하여 유추하였다. 또한, 1996년이

Table 3. Estimated and measured tritium concentrations in precipitations collected in Pohang, KAERI and Vienna, Austria during 1961 to 1997.

Year	Pohang and KAERI				Vienna			
	Total precipitation	no. of data	Average	Weighted Mean	Total precipitation	no. of data	Average	Weighted Mean
1961	1469	5	41.1	39.0	610	11	100.5	107.8
1962	738	3	221.7	225.1	540	11	910.3	902.2
1963	1055	9	1161.0	1384.7	472	10	3023.7	3278.1
1964	1138	12	708.3	720.3	595	12	1711.3	1738.1
1965	1043	11	445.9	347.6	874	10	703.9	863.9
1966	958	11	230.9	239.0	781	12	481.8	544.7
1967	854	9	130.8	148.5	569	12	281.6	297.4
1968	805	9	131.0	98.2	496	12	237.7	234.7
1969	1183	9	102.4	82.9	644	12	209.5	218.8
1970	1429	6	60.2	63.5	707	12	194.4	191.0
1971	826	12	73.8	70.3	531	12	212.7	243.2
1972	1481	11	49.4	40.8	635	12	127.5	145.2
1973	887	11	33.9	31.1	689	12	113.6	115.8
1974	1243	11	36.5	33.6	589	12	143.3	152.8
1975	1210	9	24.9	22.7	659	12	140.1	140.5
1976	1383	3	17.8	18.4	623	12	98.1	97.4
1977	1099	-	-	19.3*	581	12	86.2	93.5
1978	1466	-	-	19.1*	450	12	84.1	92.1
1979	1399	-	-	12.9*	747	12	50.7	55.3
1980	1599	-	-	10.1*	624	12	41.1	40.5
1981	1207	-	-	10.6*	566	12	44.8	43.2
1982	1008	-	-	8.5*	472	11	30.2	32.3
1983	1228	-	-	7.7*	509	12	27.2	28.7
1984	1319	-	-	5.7*	582	12	18.9	19.4
1985	1693	-	-	6.1*	657	12	21.2	21.3
1986	1245	-	-	6.2*	578	12	20.7	21.5
1987	1881	-	-	5.7*	730	12	19.1	19.4
1988	921	10	21.0	21.3	618	12	18.0	17.9
1989	1538	12	11.6	9.5	628	11	21.7	25.9
1990	1496	12	8.3	7.2	537	11	17.1	16.9
1991	1182	12	8.7	6.9	651	12	16.2	17.1
1992	1037	12	9.6	8.3	601	11	15.5	16.4
1993	1533	12	9.6	8.3	620	12	17.3	17.2
1994	858	12	9.25	7.8	609	12	15.8	16.0
1995	1136	12	8.9	5.7	772	12	15.5	15.2
1996	1279	12	27.3	15.4	-	-	-	-
1997	1766	11	18.6	14.9	-	-	-	-

\* calculated values based on the relationship,  $[\ln(^3\text{H})]_{\text{Pohang-KAERI}} = 0.9336 \ln(^3\text{H})_{\text{Vienna}} - 0.6848$ .

후의 한국원자력연구소분석자료는 '하나로연구용원자로'의 영향 받은 것으로 판단되어 상관관계 분석에서 제외시켰다. Vienna 강수와와의 상관관계식은  $\ln(\text{Tritium})_{\text{Pohang-KAERI}} = 0.9336 \ln(\text{Tritium})_{\text{Vienna}} - 0.6848$ 로 도출되었으며,  $R^2=0.9402$ 이며 분석 오차는  $\pm 0.8\text{TU}$ 이다. 이에 따라, 1977-1986년 한반도 강수에 대하여 추정된 삼중수소농도는 5.7~19.3 TU로서 매우 신뢰성 있는 것으로 판단된다.

### 결론

본 논문에서는 국내 지하수의 연대측정 및 지표수-지하수 상관관계 해석에 필수적인 강수의 장기적인 삼중수소분석결과를 제시하였다. 한반도 강수내 삼중수소함량은 핵실험이 집중된 1961-1962년 이후 1963년에 가장 높은 값을 보였으며, 현재는 핵실험 이전수준인 10 TU 정도로 비교적 일정한 값을 보인다. 삼중수소함량의 계절적인 특징은 권계면 상승에 따라 봄철 (4월-6월)에 가장 높은 값을 보이는 점이다. 또한, 1996년

부터 가동된 한국원자력연구소 '하나로 연구용원자로'의 가동에 의해 KAERI지역의 삼중수소함량이 다소 증가하였음을 보여준다. 호주 ANSTO와의 교차분석결과는 상당히 잘 일치하여 그간 한국원자력연구소에서 수행된 강수의 삼중수소 분석결과에 대한 높은 신뢰성을 보여준다.

### 사사

본 연구는 과학기술부 원자력연구개발 중장기계획사업과제의 일환으로 수행되었다.

### 참고문헌

- 고용권, 윤성택, 김천수, 최현수, 김진영, 1999a, 중원지역 탄산수의 지구화학적 진화, 자원지질환경, v. 32, no. 5, p. 469-483.
- 고용권, 김천수, 배대석, 최현수, 1999b, 초정지역 탄산수의 지구화학적 연구 II. 동위원소, 지하수환경, 심사중.
- 김계남, 구자공, 김천수, 1995, 트리튬을 이용한 지하수 연대측정 수

- 학모델 개발 및 삼광광산 주변 지하수 유동시간 분석, *지하수환경*, v. 2, p. 72-77.
- 김규한과 中井信之, 1988, 남한의 지하수 및 강수의 안정동위원소 조성, *지질학회지*, v.24, p. 39-46.
- 오진석, 김선준, 1995, 삼중수소를 이용한 지하수 연령측정 방법에 관한 연구, *지하수환경*, v. 2, p. 49-57.
- 이광식, 이인성, 최만식, 박은주, 1997, 제주도 상수의 환경동위원소 연구, *지질학회지*, v. 33, p. 139-147.
- 이광식과 장병욱, 1994, 우리나라 대전과 서울지역 강수의 안정동위원소 성분, *지질학회지*, v. 30, p. 475-481.
- 이광식과 정재일, 1997, 포항 강수의 안정동위원소 조성 변화, *자원환경*, v. 30, p. 321-325.
- 이광식과 이창복, 1999, 남한 강수와 하천수의 산소와 수소동위원소 조성, *지질학회지*, v. 35, p. 73-84.
- Ahn, J. S and Koh, Y. K., 1995. The dating of groundwater and monitoring of tritium around nuclear facilities in Korea, *Fusion Technology*, v. 28, p. 773-796.
- Burnham, C. D, Brown, R. M., Ogram, G. L. and Spencer, F. S., 1988, An overview of experiments at Chalk river on HT dispersion in the environment. *Fusion Technology*, v. 14, p. 1159-1164.
- Buttlar, H. von and Libby, W. F., 1955, Natural distribution of cosmic-ray produced tritium. II, *Jour. Inorganic Nuclear Chemistry*, v. 1, p. 75-91.
- Calif, G. E. Seatonberry, B. W., Smith, L. W., 1976, The measurement of natural levels of tritium in water, *Australian Atomic Energy Commission*, AAEC/E373. 26p.
- Combs, F and Doda, R. J., 1979, Large-scale distribution of tritium in a commercial product, In *Behavior of Tritium in the Environment*, Proc. Int'l Symp. San Francisco, 1978, IAEA, Vienna, p. 93-99.
- Clark, I. D. and Fritz, P., 1997, *Environmental Isotopes in Hydrogeology*, Lewis Publishers, New York, 328p.
- Ehhalt, D. H., 1973, Turnover times of  $^{137}\text{Cs}$  and HTO in the troposphere and removal rates of natural aerosol particles and water vapor, *Jour. Geophys. Res.*, v. 78, p. 7076-7086.
- Ferronsky, V. I. and Polyakov, V. A., 1982, *Environmental Isotopes in the Hydrosphere*, John Wiley & Sons, chichester, 466p.
- Fritz, P. and Fontes, J. Ch., 1980, *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry*, V. 1, The Terrestrial Environment A, Elsevier, Amsterdam, 545p.
- Fritz, P. and Fontes, J. ch., 1986, *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry*, V. 2, The Terrestrial Environment B, Elsevier, Amsterdam, 557p.
- Fritz, P. and Fontes, J. ch., 1989, *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry*, V. 3, The Marine Environment A, Elsevier, Amsterdam, 545p.
- International Atomic Energy Agency, 1969, *Environmental Isotope Data No. 1: World Survey of Isotopic Concentration in Precipitation (1953-1963)*, Technical Reports Series No. 96, IAEA, Vienna.
- International Atomic Energy Agency, 1970, *Environmental Isotope Data No. 2: World Survey of Isotopic Concentration in Precipitation (1964-1965)*, Technical Reports Series No. 117, IAEA, Vienna.
- International Atomic Energy Agency, 1971, *Environmental Isotope Data No. 3: World Survey of Isotopic Concentration in Precipitation (1966-1967)*, Technical Reports Series No. 129, IAEA, Vienna.
- International Atomic Energy Agency, 1973, *Environmental Isotope Data No. 4: World Survey of Isotopic Concentration in Precipitation (1968-1969)*, Technical Reports Series No. 147, IAEA, Vienna.
- International Atomic Energy Agency, 1975, *Environmental Isotope Data No. 5: World Survey of Isotopic Concentration in Precipitation (1970-1971)*, Technical Reports Series No. 165, IAEA, Vienna.
- International Atomic Energy Agency, 1979, *Environmental Isotope Data No. 6: World Survey of Isotopic Concentration in Precipitation (1972-1975)*, Technical Reports Series No. 192, IAEA, Vienna.
- International Atomic Energy Agency, 1981, *Stable Isotope Hydrology: Deuterium and Oxygen-18 in the Water Cycle*, Technical Rep. Series no. 210, IAEA, Vienna, 337p.
- International Atomic Energy Agency, 1983a, *Environmental Isotope Data No. 7: World Survey of Isotopic Concentration in Precipitation (1976-1979)*, Technical Reports Series No. 226, IAEA, Vienna.
- International Atomic Energy Agency, 1983b, *Guidebook on Nuclear Techniques in Hydrology*, Technical Reports Series No. 91, IAEA, Vienna, 439p.
- Jacobs, D. G., 1968. *Sources of Tritium and Its Behavior upon Release to the Environment*, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge Tennessee, 90p.
- Koh, Y. K., Kim, C. S., Bae, D. S., Yun, S. T., 1998, Geochemical modeling of groundwater in granite terrain: the Yeongcheon area, *Jour. Korean soc. Groundwater Environ.*, v. 5, p. 192-202.
- Lal, D and Peters, B., 1967, Cosmic-ray produced radioactivity on the earth, in *Handbook of Physics*, Springer, Berlin, p. 551-612.
- Lee, K. S., Wenner, D. B. and Lee, I. S., 1999, Using H- and O-isotopic data for estimating the relative contributions of rainy and dry season precipitation to groundwater: example from Cheju Island, Korea, *Jour. of Hydrology*, 222, p. 65-74.
- Libby, W. F., 1963, *Moratorium tritium geophysics*, *Jour. Geophys. Res.*, v. 68, p. 4485-4494.
- Miskel, J. A., 1973, Production of tritium by nuclear weapons, In *Tritium*, Eds. A. Moghissi and M. Carter, Messengers Graphics, Phoenix and Las Vegas, p. 78-85.
- Rozanski, K., Gonfiantini, R. and Araguas-Araguas, L., 1991, Tritium in the global atmosphere: distribution patterns and trends, *Jour. Phys. G: Nuclear Part Phys.*, v. 17, p.523-536.
- Thatcher, L. L. and Payne, B. R., 1965, The distribution of tritium in precipitation over continents and its significance to groundwater dating, in *Radiocarbon and Tritium Dating*, Proc. 6th Int'l Conf., Pullman, 1965, USAEC, p. 604-629.
- Yun, S. T., Koh, Y. K., Choi, H. S., Youm, S. J. and So, C. S., 1998, *Geochemistry of geothermal waters in Korea: Environmental isotope and hydrochemical characteristics II. Jungwon and Munkyeong areas*, *Econ. Environ. Geol.*, v. 31, p. 201-213.