

The Distribution of ^{137}Cs , ^{90}Sr and Pu isotopes in the Coastal Sediment of Korea

Seok-Won Choi, Hyun-Gook Jin*, Cheol-Su Kim, Jung-Whan Row, Chang-Kyu Kim and Byung-Hwan Rho

Korea Institute of Nuclear Safety, *National Fisheries Research and Development Agency

한국 연안 퇴적물에서 ^{137}Cs , ^{90}Sr 및 Pu 동위원소의 분포

최석원 · 진현국* · 김철수 · 노정환 · 김창규 · 노병환

한국원자력안전기술원, 국립수산물과학원*

(2002년 1월 3일 접수, 2002년 5월 29일 채택)

Abstract - The concentrations and activity ratios of ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ in sediment(0~20 cm) at 15 coastal stations of Korea were determined. The mean concentrations of ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ are $2.24 \pm 0.79 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$, $0.20 \pm 0.04 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$, $0.009 \pm 0.005 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$ and $0.27 \pm 0.17 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$, respectively. The mean activity ratios of $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$, $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs and $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ and atomic ratio of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ are 11.2 ± 2.9 , 0.123 ± 0.053 and 0.033 ± 0.017 and 0.218 ± 0.036 , respectively. The concentrations and activity ratios in sediment samples are similar to those reported from neighbouring country in the northern hemisphere. The correlation coefficient of ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$ is 0.80. The correlation coefficient of ^{137}Cs and soil organic matter(SOM), and $^{239+240}\text{Pu}$ and clay content are 0.69 and 0.67, respectively.

Key words : ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , sediment, soil organic matter, clay content

요약 - 한국 주변 연안 15개 정점의 퇴적물(0~20 cm)에서 ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ 의 농도와 농도 비를 조사했다. ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{238}Pu 및 $^{239+240}\text{Pu}$ 의 평균 방사능 농도는 각각 $2.24 \pm 0.79 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$, $0.20 \pm 0.04 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$, $0.009 \pm 0.005 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$ 및 $0.27 \pm 0.17 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$ 이다. $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$, $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs 및 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 의 평균 농도 비와 $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ 의 평균 원자 비는 각각 11.2 ± 2.9 , 0.123 ± 0.053 , 0.033 ± 0.016 및 0.218 ± 0.036 이다. 퇴적물에서 핵종의 농도 범위와 핵종 간의 농도 비는 그 동안 주변국가의 퇴적물에서 조사한 값과 비슷하였다. 퇴적물에서 ^{137}Cs 과 $^{239+240}\text{Pu}$ 의 상관계수는 0.80 이다. ^{137}Cs 과 SOM, $^{239+240}\text{Pu}$ 과 점토 함량과의 상관계수는 각각 0.69, 0.67 이다.

중심어 : ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , 퇴적물, 유기물 함량, 점토함량

서 론

인공방사성 물질이 해양으로 유입되는 경로는 대기권 핵실험에 의한 낙진, 원자력 관계시설에서 액체 방사성물질의 유출, 방사성폐기물의 해양 투기 등이 있다. 현재 해양에서 검출되고 있는 인공 방사성 핵종은 대부분이 과거의 대기핵실험에 의해 해양으로 유입된 방사능 물질이 해양 내에서 이동되어 검출되는 것으로 볼 수 있다. 이들 핵종 중에서 반감기가 긴 인공방사성 핵종(^{137}Cs , ^{90}Sr ,

^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$)은 방사능 오염의 지표 일 뿐만 아니라 퇴적물에서 인공방사성 핵종의 거동과 분포를 이해하는데 유용하다.

해수면 및 육상으로부터 연안으로 유입된 인공 방사성 물질의 거동은 해수 중에 녹아 있거나 해수 중 부유물질과 흡착되어 해저에 침적되며, 연안의 유동, 퇴적물의 유기물 함량, 입도 및 함수율 등의 조건에 의하여 재 부유 및 흡착을 되풀이한다. 이런 관계로 해수 및 퇴적물에서 ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{238}Pu 및 $^{239+240}\text{Pu}$ 의 준위는 국내의 가동중인

원전에 의한 환경영향 및 주변 국가의 예상하지 못한 핵 사고로 인한 환경영향 등을 평가하는데 중요한 기초자료가 된다. 해수 중에서 방사성 농도는 원자력시설 주변 및 한국 주변 해역에서 지속적으로 조사를 수행하고 있으나[1,2] 퇴적물 중에서 방사성 농도는 제한된 정점에서 일부 핵종에 대한 조사가 수행되었다[3,4]. 또한, 핵종 간의 농도 비와 원자 비는 핵종의 발생 원 및 추적 경로의 유용한 정보일 뿐만 아니라[5,6] 대기핵실험, 방사성폐기물의 해양투기, 재처리시설 및 원자력 시설의 영향을 확인할 수 있는 자료이다[7,8]. 그러나 지금까지 원전 주변을 제외하고는 국내 전

연안해역의 퇴적물 중 인공방사능에 대한 자료가 충분하지 못한 실정이다. 따라서 본 연구에서는 국내 주변 연안해역 15개 정점에서 퇴적물 중 ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{238}Pu 및 $^{239,240}\text{Pu}$ 의 방사능 농도, 범위 및 이들 핵종 간의 농도 비를 조사하고 핵종과 퇴적물 특성과의 상관성을 검토하고자 한다.

재료 및 방법

시료채취 및 퇴적물 성분분석

그림 1은 1999년도 국립수산물학원 산하 동·서·남해 수산연구소의 조사 선에서 채취한 한

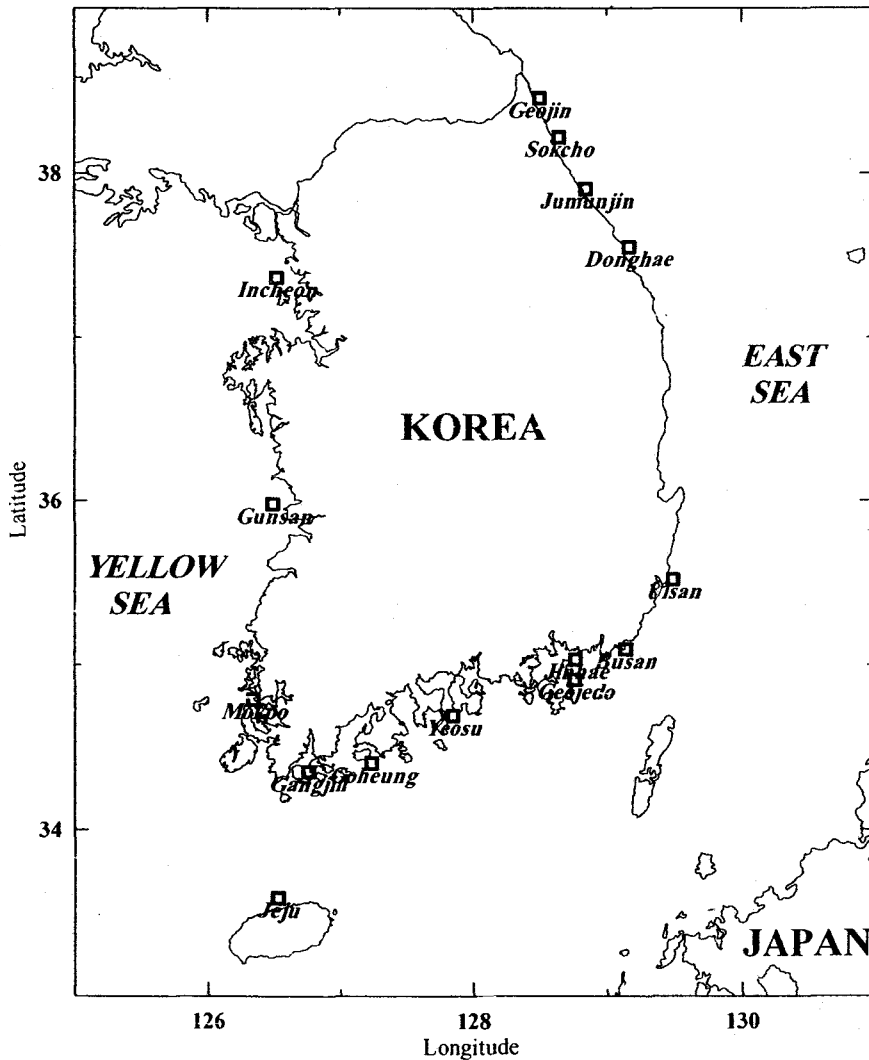


Fig. 1 Sampling station of sediments

국 연안해역 15개 시료 채취정점을 나타낸다. 시료는 box corer 및 gravity corer를 이용하여 채취한 다음 선상으로 끌어올려 표층퇴적물 및 주상퇴적물을 채취하였다. 채취한 퇴적물의 깊이는 20cm 내외이다. 퇴적물 시료는 24시간 동안 105°C에서 건조하고 2mm 체로 걸렀다. 입도 분석 및 감열감량(유기물함량)은 해양환경공정시험방법 [9]으로 수행하였다. 입도분석 간격은 1φ이며 분석결과로부터 성분, 평균입도(mean grain size) 및 분급도(sorting)를 계산하였다[10].

¹³⁷Cs의 정량

채취한 퇴적물 시료를 실험실로 운반한 후 무게를 달고 건조기에서 24시간 동안 건조하였다. 건조한 퇴적물을 막사사발로 충분히 분쇄한 후 망 목 2mm를 통과한 시료를 넓은 tray 나 종이 위에 가능한 한 평평하게 펼쳐놓고 9등분하여 각 부분별로 일정량을 취한 다음 혼합하였다. 퇴적물을 100ml 용량의 측정용기에 충전하고 시료 높이와 시료무게를 기록하였다. ¹³⁷Cs의 방사능농도는 1.22MeV에서 1.69keV의 에너지 분해능을 가진 고순도게르마늄검출기 및 다중과교분석기를 이용하였으며, 662keV의 γ 에너지를 이용하여 정량하였다. ¹³⁷Cs의 검출 하한치는 0.12Bq · kg⁻¹였다.

⁹⁰Sr 정량

건조 시료 100g을 취하여 전기로에서 넣은 후 24시간 동안 480°C에서 태워 유기물을 제거하였다. 기지농도의 안정 Sr일정량을 화학 회수를 담체로 시료에 첨가하고 진한 염산을 이용하여 퇴적물 입자로부터 Sr을 추출 회수하였다. 추출한 여액에 Na₂CO₃를 넣어 탄산염침전을 만들고 이를 원심 분리하였다. 회수된 탄산염 침전을 옥살산을 넣어 스트론튬(칼슘)옥살레이트(Sr(Ca)C₂O₄) 침전을 만든 뒤 이 침전에 발연질산을 넣어 용해도 차이를 이용하여 칼슘을 제거하고 소량 존재하는 Ba, Ra은 크롬공침법으로 제거하였다. 14일 이상 방치하여 ⁹⁰Sr과 ⁹⁰Y의 방사평형이 되게 한 후 스트론튬 용액에 이트리움 담체를 넣고 수산화 이트리움 침전을 만들었다. 침전을 염산으로 녹인 다음 옥살산을 넣어 pH 1.2~1.5에서 만든 이트리움 옥살레이트 침전을 24mm프란첷에 부착한 후 프란첷을 저준위 알파/베타 가스비례계수기로 계측하여 ⁹⁰Sr의 딸 핵종인 ⁹⁰Y을 계측하여 ⁹⁰Sr 농도를 계산하였다. ⁹⁰Sr의 검출 하한치는 0.15 Bq · kg⁻¹였다.

Pu 정량

Pu 분석은 건조된 퇴적물 50g을 도가니에 취하여 480°C의 전기로에서 24시간동안 태워 유기물을 분해한 뒤 ²⁴²Pu 추적자와 질산용액을 첨가한 뒤 가열판 위에서 Pu를 산 추출하였다. 추출액에 존재하는 Pu을 음이온 교환수지 방법으로 순수 분리한 다음 전기전착(electro-deposition) 하여 α-Spectrometry를 이용하여 ²³⁸Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu을 정량하였다. 300,000초 동안 검출 하한치는 5mBq · kg⁻¹이다.

²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 원자비 측정

500°C회화로에서 약 1시간동안 가열하여 유기물을 제거한 퇴적물 1g에 일정량의 ²⁴²Pu(0.5 ml, 184 pg/ml stock solution) 추적자와 강 질산 50 mL를 첨가한 후 가열판에서 약 1시간동안 가열 및 교반하였다. 추출액을 유리섬유 여과지 (GF/B, Whatman, USA)로 여과하여 잔유물을 제거한 후 잔유물을 이용하여 다시 한번 30분 동안 산 추출한 후 약 100°C에서 전체 여과액을 약 4mL 까지 될 때까지 증발 농축하였다.

Table 1 Operating conditions of HR ICP-MS for the measurement of ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu atomic ratio.

ICP conditions	
RF power (kW)	1.35
Coolant gas flow rate (ℓ/min)	14
Auxiliary gas flow rate (ℓ/min)	1.5
Carrier gas flow rate (ℓ/min)	0.7
Soln. uptake rate (ℓ/min)	1.0
Interface conditions	
Load coil to aperture (mm)	7
Aperture diameter (mm)	1
Data acquisition	
Mass range (a. m. u.)	²³⁸ Pu ²⁴⁰ Pu
Dwell time (ms)	238.4-239.6 239.4-240.6
Number of channels	100 200
Channels for one peak search	200 400
Number of runs	100 100
	3 3

농축액의 질산 농도를 4M이 되게끔 하여 20mL 테프론 바이오텔에 옮겨 담았다. 온라인 Pu

분리기에 시료를 넣기 전 NaNO_2 약 50mg을 첨가 한 후 0.45mm 멤브레인 필터가 달린 주사기 필터를 이용하여 최종 주입액을 다시 한번 여과 한 후 온라인 Pu 분리기에 주입하여 었다. 분리를 통해 주입한 용액을 HR-ICP-MS(Plasma Tracer 2, Micromass)를 이용하여 ^{239}Pu 및 ^{240}Pu 를 계측하였다. HR-ICP-MS를 이용한 ^{239}Pu 및 ^{240}Pu 의 측정조건을 표 1에 나타내었다.

결과 및 고찰

핵종별 농도 및 범위

한국 연안 15개 정점에서 채취한 퇴적물 중 ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{238}Pu 및 $^{239+240}\text{Pu}$ 의 방사능 농도는 표 2와 같다. ^{137}Cs 및 ^{90}Sr 의 방사능 농도의 범위는 각각 1.34~3.69 $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$ (평균 : 2.24 ± 0.79

$\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$), 0.11~0.26 $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$ (평균 : $0.20 \pm 0.04 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$) 이다. 일본 연안 14개 정점에서 채취한 퇴적물에서 조사한 ^{137}Cs 과 ^{90}Sr 의 방사능 농도 범위는 0.2~5.8 $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$ (평균 : $1.85 \pm 1.24 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$), 0.11~0.33 $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$ (평균 : $0.23 \pm 0.08 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$)이고[11], 동해북부 러시아 핵폐기물 투기 해역 퇴적물에서 조사한 ^{137}Cs 과 ^{90}Sr 의 방사능 농도는 1.49~2.76 $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$ (평균 : $2.13 \pm 0.48 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$), 0.19~0.29 $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$ (평균 : $0.24 \pm 0.05 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$)이다[3,11]. 이와 같은 결과를 볼 때, 한국 연안 퇴적물에서 방사능(^{137}Cs , ^{90}Sr)농도 및 범위는 한국 주변 해역인 일본 연안과 동해 북부 해역의 퇴적물에서 조사한 방사능 농도 및 범위와 거의 일치한다.

한국 연안퇴적물에서 $^{239+240}\text{Pu}$ 의 방사능 평균

Table 2 Concentrations of ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ in sediment.

No.	Station	Concentration ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$)			
		^{137}Cs	^{90}Sr	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$
1	Geojin	1.66 ± 0.43*	0.19 ± 0.05	0.007 ± 0.002	0.30 ± 0.01
2	Sokcho	3.69 ± 0.45	0.26 ± 0.05	0.013 ± 0.005	0.70 ± 0.04
3	Jumunjin	1.48 ± 0.34	0.11 ± 0.05	-	0.26 ± 0.02
4	Donghae	2.30 ± 0.41	0.22 ± 0.05	0.014 ± 0.005	0.23 ± 0.01
5	Ulsan	3.19 ± 0.42	0.20 ± 0.04	0.007 ± 0.003	0.31 ± 0.02
6	Busan	3.51 ± 0.49	0.23 ± 0.06	0.011 ± 0.003	0.47 ± 0.02
7	Jinhae	2.88 ± 0.43	0.24 ± 0.05	0.019 ± 0.007	0.53 ± 0.05
8	Geojedo	-	0.17 ± 0.05	-	0.20 ± 0.02
9	Yeosu	1.43 ± 0.37	0.23 ± 0.04	0.008 ± 0.004	0.28 ± 0.02
10	Goheung	2.14 ± 0.40	0.23 ± 0.05	0.004 ± 0.002	0.17 ± 0.01
11	Gangjin	2.03 ± 0.45	0.25 ± 0.05	0.004 ± 0.002	0.14 ± 0.01
12	Mokpo	-	0.24 ± 0.06	0.014 ± 0.005	0.19 ± 0.01
13	Gunsan	1.87 ± 0.55	0.16 ± 0.04	0.003 ± 0.002	0.14 ± 0.01
14	Incheon	1.56 ± 0.36	0.13 ± 0.04	-	0.08 ± 0.01
15	Jeju	1.34 ± 0.31	0.17 ± 0.05	0.003 ± 0.002	0.08 ± 0.01
Mean		2.24 ± 0.79	0.20 ± 0.04	0.009 ± 0.005	0.27 ± 0.17
Range		1.34 ~ 3.69	0.11 ~ 0.26	0.003 ~ 0.140	0.08 ~ 0.70

- means not determined

* means standard deviation

농도(0.27±0.17 Bq·kg⁻¹-dry)와 범위(0.08~0.70 Bq·kg⁻¹-dry)는 러시아 Kara Sea 연안과[12] 동해북부 러시아 핵폐기물 투기 지역에서 조사한 평균과 범위와 비슷한 준위이다. 한국연안 퇴적물에서 ²³⁸Pu의 농도(0.009±0.005 Bq·kg⁻¹-dry)는 러시아 연안 퇴적물의 평균농도(0.0087 Bq·kg⁻¹-dry)보다 약간 높았으나 이러한 차이는 지점간의 편차 범위이내 이다[12].

핵종간의 농도 비

핵종 간의 방사능 농도 비는 환경에 존재하는 방사성 핵종의 기원을 추정할 수 있고 대기 및 육지로부터 해양환경으로 유입한 후 각 핵종 간의 화학특성의 차이를 나타내는 주요한 지표이다.

한국 연안 정점에서 퇴적물 중 ¹³⁷Cs/⁹⁰Sr의 농도 비의 평균은 11.2±2.9 로서 대기 핵실험으로

인한 낙진 중 두 핵종 간의 농도 비인 1.6보다 높게 나타났고[13], 정점들간의 범위는 6.2~16.0 이다(표 3). 이와 같이 ¹³⁷Cs/⁹⁰Sr의 농도 비가 방사능 낙진의 농도 비보다 높은 것은 한국 주변에 위치한 일본 연안, 동해 북부해역, 황해와 발해 그리고 한국과 동 위도 상에 위치한 알제리 연안에서 조사한 다른 연구결과에서도 나타나고 있다 [3,11,14,15]. 노르웨이 호수와 러시아 Kara 해역에서 ¹³⁷Cs과 ⁹⁰Sr이 퇴적물에 흡착되는 정도를 비교한 연구결과에 따르면, 노르웨이 호수에서는 ⁹⁰Sr 낙진의 10 % 이하가 퇴적물에 축적되는데 비해 ¹³⁷Cs의 50 % 정도가 퇴적물에 축적되기 때문에 ¹³⁷Cs/⁹⁰Sr 농도 비가 대기 핵실험 낙진 중 두 핵종간의 농도 비보다 높게 나타나고[16]. Kara 해에서는 ¹³⁷Cs의 90~100%가 퇴적물과 강하게 흡착되어 퇴적물의 깊이가 깊어질수록 농도가

Table 3 Activity ratios and atomic ratio in sediment.

No.	Station	Activity Ratio		Atomic Ratio	
		¹³⁷ Cs/ ⁹⁰ Sr	²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu
1	Geojin	8.7	0.181	0.022	0.238
2	Sokcho	14.2	0.190	0.018	0.222
3	Jumunjin	13.5	0.177	-	0.232
4	Donghae	10.5	0.102	0.060	0.231
5	Ulsan	16.0	0.096	0.022	0.202
6	Busan	15.3	0.135	0.023	0.212
7	Jinhae	12.0	0.185	0.036	0.190
8	Geojedo	-	-	-	0.255
9	Yeosu	6.2	0.193	0.030	0.235
10	Goheung	9.3	0.079	0.022	0.200
11	Gangjin	8.1	0.071	0.027	0.165
12	Mokpo	-	-	0.072	0.310
13	Gunsan	10.6	0.076	0.018	0.186
14	Incheon	12.0	0.051	-	0.231
15	Jeju	7.9	0.060	0.043	0.165
Mean		11.2 ± 2.9*	0.123 ± 0.053	0.033 ± 0.017	0.218 ± 0.036
Range		6.2 ~ 16.0	0.051 ~ 0.193	0.018 ~ 0.072	0.165 ~ 0.310

- means not determined

* means standard deviation

증가하지만 ^{90}Sr 의 약 60%가 이동하여 깊이가 깊어질수록 농도가 감소하는 것으로 나타났다 [16,17]. 이와 같은 결과로 볼 때, ^{137}Cs 이 ^{90}Sr 에 비해 퇴적물에 흡착되는 정도가 크기 때문에 $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 의 농도 비가 방사능 낙진 중 두 핵종 간의 농도 비보다 높게 나타나는 것으로 추정된다.

$^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 의 농도 비 평균은 0.123 ± 0.053 이고 정점들의 농도 비 범위는 0.051~0.193 이다(표 3). 한국연안 퇴적물에서 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 의 농도 비의 평균과 그 범위는 동해 상 울릉도 부근과 일본 Seto Inland Sea의 퇴적물에서 조사한 비와 지점 간의 편차 범위 내에서 일치하나 동해 북부 해역과 동 위도상의 알제리에서 조사한 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 의 농도 비보다 높다[4,14,18].

북반구 해양퇴적물에서 플로트늄 농도는 일부 지역을 제외하고는 성층권 낙진의 영향을 받는다 [19]. $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 의 농도 비와 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 의 원자 비는 표 3과 같다. 위성 SNAP-9A의 사고로 증가된 ^{238}Pu 의 농도로 부터 북위 55°에서 대기 낙진 중 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 의 농도 비 [20]로부터 추정 한 비는 0.028이다[21]. 한국연안 퇴적물에서 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 의 농도 비 평균은 0.033 ± 0.017 로서 한반도 토양과 일본퇴적물에서 이들의 농도 비 [22,23]와는 편차의 범위 이내이다. 한편, Chernobyl 원전 주변 배출구(0.462), Kara Sea의 reactor 투기지역(0.26~0.49), Shelafield (0.18) 및 la Hague(0.5~0.6) 재처리 시설 주변, 이 재처리 시설의 영향을 받은 북해 주변국 연안(0.10) 퇴적물의 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 의 농도 비는 방사성물질을 배출한 시설이 없는 한국연안의 퇴적물에서 농도 비와는 크게 다르다[12,21].

대기낙진에서 조사한 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 의 원자 비는 0.18 ± 0.01 이고 [24], 1970-1971년 전 지구의 육상 토양에서 조사한 원자 비는 0.176 ± 0.014 이다 [25]. 한국 연안 퇴적물에서 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 의 원자 비 평균은 0.218 ± 0.036 (범위 : 0.165~0.310)로서 지구낙진에서 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 의 원자비보다 약간 높은데, 이는 조사 정점의 퇴적물에서 원자비가 대기 낙진의 비보다 높게 나타났기 때문이다. 그런데 1950년대 두 차례에 걸친 수중 핵실험을 행한 러시아 Barents Sea (Chernaya Bay), 파손된 핵무기로부터 누출된 플로토늄의 영향으로 스페인 (Palomares) 및 그린란드(Thule)에서 원자 비는 각각 0.03, 0.015 및 0.0275이다[27]. 이와 같이 과거 핵물질의 누출이 있었던 해역에서 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 의 원자 비는 대기 핵 실험에 의한 낙진준위 및

한국 연안 퇴적물에서 원자 비보다 약 10 배정도 낮다. 따라서 한국연안 퇴적물 중 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 농도 비 및 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 원자 비는 지구낙진에서 농도 비와 원자 비와 거의 일치한다.

핵종 간 방사능 농도의 상관

그림 2는 15개 조사정점에서 퇴적물 중 ^{137}Cs 의 농도와 ^{90}Sr , ^{238}Pu 및 $^{239+240}\text{Pu}$ 방사능 농도와의 상관관계를 나타낸다. ^{137}Cs 의 농도가 증가함에 따라 ^{90}Sr , ^{238}Pu 및 $^{239+240}\text{Pu}$ 의 농도도 선형적

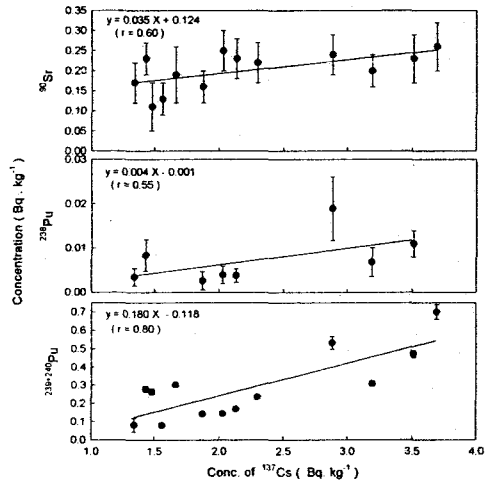


Fig. 2. The relationship between the concentrations of ^{137}Cs and the concentrations of ^{90}Sr , ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ in 15 stations.

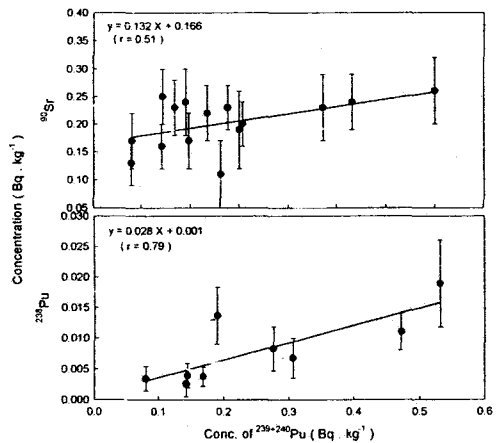


Fig. 3. The relationship between the concentrations of $^{239+240}\text{Pu}$ and the concentrations of ^{90}Sr and ^{238}Pu in 15 stations.

으로 증가하는 경향성을 보여주고 ¹³⁷Cs과 ⁹⁰Sr, ²³⁸Pu 및 ^{239,240}Pu의 상관계수는 각각 0.60, 0.55 및 0.80 이다. 조사한 퇴적물에서 ^{239,240}Pu과 ⁹⁰Sr 및 ²³⁸Pu의 상관정도는 각각 0.51, 0.79이고(그림 3), 퇴적물에서 ¹³⁷Cs과 ^{239,240}Pu의 상관 정도는 다른 핵종 간의 상관 정도보다 높다. 이와 같이 핵종 간의 상관 정도가 차이가 나는 것은 대기에서 유입된 핵종이 해수 중에서 용해 및 침강되는 정도와 퇴적물과의 흡착 정도의 차이로 인한 것으로 사료된다[16,17]. 한편, 일본과 러시아 Kara Sea의 연안 퇴적물에서 조사한 ¹³⁷Cs과 ^{239,240}Pu의 상관 계수[12,18]도 본 연구에서 조사한 이들 핵종 간의 상관 정도와 거의 비슷하다.

퇴적물특성과 방사성 핵종의 관계

퇴적물에서는 방사성물질이 흡착된 부유물이 퇴적하면 기존의 광물질에 방사성물질이 결합된 형태의 화합물로 존재한다. 방사성물질에 따라 상이하나 퇴적물의 유기물 함량, 점토광물 함량이 증가할수록, 퇴적물의 세립질 일수록 퇴적물은 방사성물질의 반응정도가 높아진다[27]. 한국 연안 15개 정점에서 조사한 퇴적물의 입도, 분급도 및

유기물 함량은 표 4와 같다. 조사 정점에 대한 퇴적물의 입도($\varphi = -\log 2$)의 평균은 $4.16 \pm 0.60 \varphi$ 이고 입도의 범위는 2.67(인천)~4.75 φ (거진)로서 조사정점 중에서 인천이 가장 조립질이고 거진이 가장 세립질이다. 분급도(φ)의 평균은 $-0.19 \pm 1.59 \varphi$ 로서 분급이 매우 좋으며 여수가 분급이 가장 양호(-0.59φ)하며 속초, 거제도 등은 분급이 나쁘다.

퇴적물에서 조사한 점토성분에 대한 함량의 평균값은 $64 \pm 19\%$ 이고 그 범위가 21(거진, 주문진)~79(진해)%이다. 동해 북부연안에 위치한 주문진, 속초 및 동해는 퇴적물의 성분 중에서 모래의 함량이 60% 이상으로서 모래 성분이 우세하나 남해안에 위치한 정점에서는 점토함량이 70% 내외로서 점토 성분이 높다. 일본 동경만에서 미세입자 형태의 점토광물과 조립질의 모래에서 방사성물질의 농도를 비교 분석한 결과, 점토광물이 모래질보다 ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ¹⁴⁴Ce의 농도가 높게 나타나고 점토광물에서 ¹³⁷Cs, ¹⁴⁴Ce의 방사능 농도는 ⁹⁰Sr 보다 10배, 100배 정도 높다[28,29]. ¹³⁷Cs은 퇴적물 중에 칼슘, 마그네슘, 칼륨의 성분이 많이 함유되면 반응이 일어나서 특히 실트에

Table 4 Content, size and SOM in sediment

No.	Station	clay(%)	silt(%)	sand(%)	mean grain size(φ)	sorting(φ)	SOM(%)
1	Geojin	21	2	77	4.75	1.57	1.23
2	Sokcho	27	12	61	4.38	2.83	5.52
3	Jumunjin	21	2	77	4.71	1.54	1.13
4	Donghae	34	6	60	4.66	1.97	4.50
5	Ulsan	66	12	24	3.78	-1.51	8.40
6	Busan	75	5	20	4.44	-1.52	7.45
7	Jinhae	79	4	17	4.64	-1.81	9.60
8	Geojedo	69	6	25	4.07	-0.99	5.70
9	Yeosu	69	6	25	4.52	-1.75	6.60
10	Goheung	67	5	28	4.22	-0.59	5.25
11	Gangjin	68	6	26	4.29	-1.26	5.18
12	Mokpo	50	13	37	3.01	-1.06	4.30
13	Gunsan	64	6	30	3.92	-1.11	4.40
14	Inchon	44	6	50	2.67	-1.09	2.86
15	Jeju	37	4	59	4.73	2.03	4.15
	Range	21~79	2~13	17~77	2.67~4.75	-2.39~2.83	1.23~9.60
	Mean	64 ± 19 *	7 ± 3	35 ± 19	4.16 ± 0.60	-0.19 ± 1.59	5.16 ± 2.53

* means standard deviation

흡착이 잘되고 Pu은 유기물이 풍부한 퇴적물과 강하게 흡착한다[11]. 점토성분의 함량이 낮은 거진, 속초, 주문진, 등해를 제외한 조사 정점간의 점토성분의 함량과 ^{137}Cs , ^{90}Sr 및 $^{239+240}\text{Pu}$ 의 상관계수는 0.57, 0.54 및 0.67이다(그림 4).

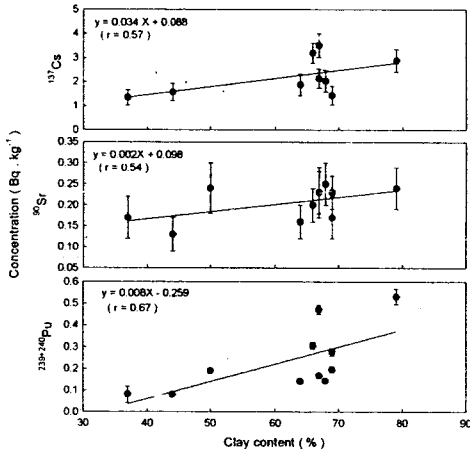


Fig 4. The relationship between clay content(%) and concentrations of ^{137}Cs , ^{90}Sr and $^{239+240}\text{Pu}$ in 11 stations.

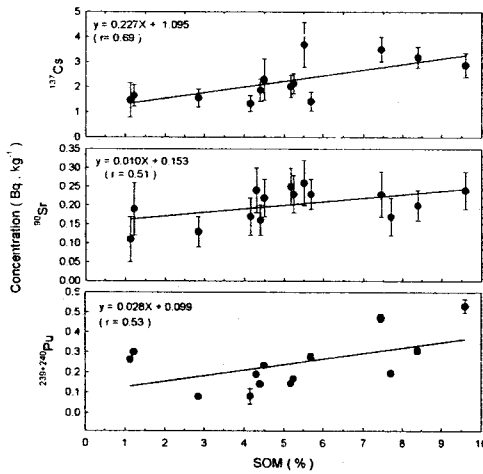


Fig 5. The relationship between soil organic matter content (SOM) and the concentrations of ^{137}Cs , ^{90}Sr and $^{239+240}\text{Pu}$ in 15 stations.

유기물 함량의 평균은 $5.16 \pm 2.53\%$ 이고 그 범위가 1.23(주문진)~9.60(진해)%이다. 거진, 주문진의 유기물 함량은 1.2%내외이고 인천은 2.86%로 평균값에 비해 낮고 진해, 울산, 및 부산은 평

균값에 비해 높다. 특히, 퇴적물의 성분 중에서 모래의 함량이 높으면 유기물의 함량이 낮는데, 이들은 전 조사정점에서 유기물의 함량과 모래 함량과의 상관계수가 -0.82로서 둘간에는 역 상관을 가지는 것과 일치한다. 한편, 전 조사 정점의 퇴적물에서 유기물량과 ^{137}Cs , ^{90}Sr 및 $^{239+240}\text{Pu}$ 의 농도간에는 상관의 정도가 0.69, 0.51 및 0.53(그림 5)이고 이들의 상관계수는 공히 0.5이상이다. 또한, 러시아 북해에서 유기물 함량과 ^{137}Cs 및 $^{239+240}\text{Pu}$ 의 상관정도[11,30]는 한국연안 퇴적물에서 조사한 결과와 유사하였다. 이러한 상관성의 차이는 유기물이 ^{137}Cs 과는 물리적으로 유지되는 특징이 있는 반면[31] ^{90}Sr 은 2가의 양이온과 쉽게 치환되어 이동하는 현상과 관련이 있는 것으로 사료된다. 이상의 결과를 볼 때, ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ 의 농도는 점토함량과 유기물함량과 관련이 있음을 시사한다.

결론

본 연구에서는 한국 주변 연안 15개 정점의 퇴적물(0~20cm)을 대상으로 하여 ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{238}Pu 그리고 $^{239+240}\text{Pu}$ 의 방사능 농도 및 핵종 간의 방사능 농도 비를 조사했다. 또한, 해저퇴적물의 성분(점토함량과 유기물함량)에 따른 이들 핵종과의 관련성을 검토하였다. ^{137}Cs 및 ^{90}Sr 의 방사능 농도의 범위는 각각 $1.34 \sim 3.69 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$ (평균 : $2.24 \pm 0.79 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$), $0.11 \sim 0.26 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$ (평균 : $0.20 \pm 0.04 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$)이고, ^{238}Pu 및 $^{239+240}\text{Pu}$ 방사능 농도의 범위는 각각 $0.003 \sim 0.140 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$ (평균 : $0.009 \pm 0.005 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$), $0.08 \sim 0.70 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$ (평균 $0.27 \pm 0.17 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}\text{-dry}$)이다. $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$, $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 및 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 의 평균 농도 비와 $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ 의 평균 원자 비는 각각 11.2 ± 2.9 , 0.123 ± 0.053 , 0.033 ± 0.016 및 0.218 ± 0.036 이다. 이러한 방사능 농도와 핵종간의 방사능 농도 비는 한국 주변에 위치한 일본 연안, 동해 북부해역, 황해와 발해 그리고 한국과 동 위도상에 위치한 해역에서 조사한 값과 비슷하였다. 퇴적물 중에서 ^{137}Cs 과 $^{239+240}\text{Pu}$ 및 ^{238}Pu 과 $^{239+240}\text{Pu}$ 의 상관계수는 0.80과 0.79로서, 이들 핵종 간에는 높은 상관관계를 보인다. ^{137}Cs 과 유기물 함량, $^{239+240}\text{Pu}$ 과 점토 함량 사이에도 높은 상관을 보였다. 본 연구에서 얻은 우리나라 주변 해역 퇴적물 중 ^{137}Cs , ^{90}Sr , Pu 동위원소 자료는 국내 원자력 시설 및 인접국 연·근해에서 발생한 방사능 사고에 의한 우리

나라 주변 해역의 영향을 확인하기 위한 비교·판단 자료로서 활용될 것으로 기대된다.

참고문헌

1. 한국원자력안전기술원, 원자력시설주변 환경조사 및 평가보고서, KINS/AR-730(1998).
2. 한국원자력안전기술원, 전국환경방사능조사(Vol. 31), KINS/AR-409(1999).
3. 과학기술처, 동해 핵폐기물조사, KINS/GR-096(1995).
4. M. H. Lee, C. W. LEE, D. S. Moon, K. H. Kim and B. H. Boo, "Distribution and inventory of fallout $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in the sediment of the East Sea of Korea," *J. Environ. Radioactivity*, 41, 99-110(1998).
5. M. Koide, J. J. Griffin and E. D. "Goldberg, Records of plutonium in marine and terrestrial samples," *J. Geophys. Res.*, 80, 4153-4162(1975).
6. M. Koide, K. K. Bertine, T. J. Chow and E. D. Goldberg, "The $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratio, a potential geochronometer," *Earth Planet. Sci. Lett.*, 72, 1-8(1985).
7. T. M. Beasley, L. A. Ball, J. E. Andrews and J. E. Halverson, "Hanford-derived plutonium in Columbia River sediments," *Science*, 214, 913-915(1981).
8. V. T. Bowen and W. Roether, "Vertical distributions of strontium-90, cesium-137 and tritium about 45 north latitude in the Atlantic," *J. Geophys. Res.*, 78, 6277-6285(1973).
9. 해양수산부, 해양환경공정시험방법, 해양수산부, 133-155(1997).
10. R. L. Folk and W. C. Ward, "Brazos River Bar: A study in the significance of grain-size parameters," *J. Sed. Pet.*, 27, 1-27(1957).
11. M. Baskaran, S. Asbill, P. Santschi, J. Brooks, M. Champ, D. Adkinson, M. R. Colmer and V. Makeyev, "Pu, ^{137}Cs and excess ^{210}Pb in Russian Arctic sediments," *Earth Planet. Sci. Lett.*, 140, 243-257(1996).
12. NIRS, "Radioactivity survey data in Japan, Part I. Environmental Materials," National Institute of Radiological Sciences Report, NIRS-108(1999).
13. G. Manjón, F. El-Daoushy and R. García-Tenorio, " ^{90}Sr in lake sediments," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 219, 1, 95-98(1997).
14. A. Noureddine and B. Baggoura, "Plutonium isotopes, ^{137}Cs , ^{90}Sr and natural radioactivity in marine sediments from Ghazaouet (Algera)," *J. Environ. Radioactivity*, 34, 127-138(1997).
15. H. Zhu, S. Li, F. Wu, F. Sun, Q. Liu and W. Yang, "Radioactivity in the coastal waters of the Bohai and Yellow Seas of China," *J. Environ. Radioactivity*, 14, 193-209(1991).
16. B. Salbu, H. E. Bjornstad and J. E. Brittain, "Radionuclide mobility and bioavailability in Norwegian and Soviet Soil," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 156, 7-14(1992).
17. P. E. Børretzen, H. Fjelldal, H. Lien, D. H. Oughton and B. Salbu. "Mobility of radionuclides in sediments from Abrosimov and Stepovogo Fjord," in: Environmental radioactivity in the Arctic. P. Stand and A. Cooke, eds., 1st ed., pp. 168-172, Oesteraas Press, Norway(1995).
18. K. Nakamura and Y. Nagaya, "Distribution of ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$ in the sediment of the Seto inland sea," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 138, 153-164(1990).
19. P. I. Mitchell, L. L. Vintroa, H. Dahlgaard, C. Gascoc and J. A. Sanchez-Cabezad, "Perturbation in the $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ global fallout ratio in local sediments following the nuclear accidents at Thule (Greenland) and Palomares (Spain)," *Sci. Total Environ.*, 202, 147-153(1997).

20. E. P. Hardy, P. W. Krey and H. L. Volchok, "Global inventory and distribution of fallout plutonium," *Nature*, 241, 444-445 (1973).
21. J. P. Beks, "Storage and distribution of plutonium, ^{241}Am , ^{137}Cs , ^{210}Pb s in North Sea sediments," *Cont. Shelf Res.* 20, 1941-1964 (2000).
22. C. S. Kim, M.H. Lee, C. K. Kim and K. H. Kim, " ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239-240}\text{Pu}$ and ^{238}Pu concentrations in surface soils of Korea," *J. Environ. Radioactivity*, 40, 75-88(1998).
23. K. O. Buesseler and E. R. Sholkowitz, "The geochemistry of fallout plutonium in the North Atlantic: II. Ratios and Their Significance," *Geochim Cosmochim. Acta*, 51, 23-2637(1987)
24. M. Yamamoto, "Radiochemical studies on transuranium elements in the environment, Ph. D. diss. Tsukuba Univ.,(1992).
25. P.W. Krey, E. P. Hardy, C. Pachucky, F. Rourke, J. Coluzza and W. K. Benson, "Mass isotopic composition of global fall-out plutonium in soil," in: *Proc. Int. Symp. on Transuranium Nuclides in the Environment*, SM-199/39. pp. 671-678, IAEA, Vienna(1976).
26. J. N. Smith, K. M., Ellis, L. Polyak, G. Ivanov, S. L. Forman and S. B. Moran, " $^{239,240}\text{Pu}$ transport into Arctic Ocean from underwater nuclear tests in Chernaya Bay, Novaya Zembya," *Cont. Shelf Res.* 20, 255-279(2000).
27. 한국전력공사, 방사성물질의 해양중 거동특성 기초조사 및 평가(최종보고서), TR. 98NJ18. J11999.781(1999).
28. Y. Nagaya and M. Saiki, "Accumulation of radionuclides in coastal sediment of Japan (I). Fallout radionuclides in some coastal sediments in 1964-1965," *J. Radiat. Res.*, 8,37-43(1967).
29. K. Nakamura and Y. Nagaya, "Accumulation of radionuclides in coastal sediment of Japan (II). Contents of fission products in some coastal sediments collected in 1966-1972," *J. Radiat. Res.*, 16, 184-192(1975).
30. J. M. Smith, K. M. Ellis, K. Naes, S. Dahle and D. Matishov, "Sedimentation and mixing rates of radionuclides in Barents Sea sediments off Novaya Zemlya," *Deep-Sea Res.*, 42, 1471-1493(1995).
31. F. Garcia-Oliva, R. Martinez Lugo, and M. J. Maass, "Soil ^{137}Cs activity in a tropical deciduous ecosystem under pasture conversion in Mexico," *J. Environ. Radioactivity*, 26, 37-49, (1995).