

Soil-to-Rice Seeds Transfer Factors of Radioiodine and Technetium for Paddy Fields around the Radioactive-Waste Disposal Site in Gyeongju

경주 방사성 폐기물 처분장 주변 논에 대한 방사성 요오드와 테크네튬의 토양-쌀알 전이계수

Yong-Ho Choi¹⁾, Kwang-Muk Lim, In Jun, Doo-Won Park, Dong-Kwon Keum and Moon-Hee Han

Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeok-daero Yuseong-gu, Daejeon

최용호¹⁾, 임광목, 전인, 박두원, 금동권, 한문희

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

(Received February 19, 2010 / Revised June 03, 2010 / Approved November 02, 2010)

Abstract

Radiotracer experiments were performed over two years using pot cultures in a greenhouse to investigate soil-to-rice seeds transfer factors of radioiodine and technetium for paddy fields around the radioactive-waste disposal site in Gyeongju. Before transplanting rice seedlings, the top about 20 cm soils were thoroughly mixed with ^{125}I (2007) and ^{99}Tc (2008), and the pots were irrigated to simulate flooded rice fields. Transfer factors were determined as the ratios of the radionuclide concentrations in dry rice seeds (brown rice) to those in dry soils. Transfer factors of radioiodine and technetium were in the ranges of $1.1 \times 10^{-3} \sim 6.4 \times 10^{-3}$ (three soils) and $5.4 \times 10^{-4} \sim 2.5 \times 10^{-3}$ (four soils), respectively, for different soils. It seems that the differences in the clay content among soils played a more important role for such variations than those in the organic matter content and pH. As the representative values of radioiodine and technetium transfer factors for rice seeds, 2.9×10^{-3} and 1.1×10^{-3} , respectively, were proposed. In order to obtain more highly representative values in the future, investigations for the sites of interest need to be carried out continuously.

Key words : Gyeongju, Paddy Soil, Rice Seeds, Transfer Factor, Radioiodine, Technetium.

요 약

경주 방사성 폐기물 처분장 주변 논에 대한 방사성 요오드 및 테크네튬의 토양-쌀알 전이계수를 조사하기 위하여 온실 내에서 포트재배로 방사성 추적자 실험을 2 년에 걸쳐 수행하였다. 모내기 전에 상부 약 20 cm 깊이의 흙을 ^{125}I (2007 년) 및 ^{99}Tc (2008 년)와 고르게 혼합한 다음 포트에 관개하여 물이 찬 논같이 만들었다. 전이계수는 토양 중 방사성 핵종 농도에 대한 쌀알(현미) 내 농도의 비로 나타내었다. 쌀알의 방사성 요오드 및 테크네튬 전이계수는 토양에 따라 각각 $1.1 \times 10^{-3} \sim 6.4 \times 10^{-3}$ (세 토양) 및 5.4×10^{-4}

1) Corresponding Author. E-mail : yhchoi1@kaeri.re.kr

~ 2.5×10^{-3} (네 토양)의 범위였다. 이러한 변이에 대해서는 토양 간 점토 함량의 차이가 유기물 함량이나 pH의 차이보다 중요한 역할을 한 것으로 보였다. 쌀알의 방사성 요오드 및 테크네튬 전이계수의 대표치로서 각각 2.9×10^{-3} 및 1.1×10^{-3} 이 제안되었다. 앞으로 보다 대표성이 높은 값을 얻기 위하여 관심 부지들을 대상으로 조사가 지속적으로 수행될 필요가 있다.

중심단어 : 경주, 논, 토양, 쌀알, 전이계수, 방사성 요오드, 테크네튬.

I. 서론

방사성 핵종의 토양-작물체 전이계수는 원자력 시설 주변 주민에 대한 섭취선량 평가 모델에서 농산물 내 핵종의 농도를 예측하는 데 필요한 파라미터로서 통상 토양 중 핵종 농도(Bq kg⁻¹)에 대한 작물체 내 농도(Bq kg⁻¹)의 비로 나타낸다[1~4]. 농경지는 작물을 파종 또는 이식하기 전에 흙갈이를 하므로 농경지에 침적된 방사성 핵종은 상층부의 토양과 섞이게 된다. 이때 핵종이 지표로부터 일정한 깊이까지 균일하게 섞인다고 가정하면 핵종의 침적량으로부터 혼합층 토양 중 농도를 구할 수 있고 이에 전이계수를 곱하면 토양침적에 따른 작물체 내 농도를 산정할 수 있다.

위와 같은 전이계수는 토양의 특성이나 작물의 종류에 따라 값이 크게 변할 수 있으므로 부지 또는 자국의 환경특성에 맞는 값을 사용하는 것이 중요하다. 구미 등의 원자력 선진국들에서는 원자력 시설의 환경영향 평가와 관련하여 수십 년 전부터 전이계수에 대한 연구를 수행하여 많은 양의 자료를 축적해 오고 있다. 본 연구의 관심 핵종인 방사성 요오드(I)나 테크네튬(Tc)에 대해서도 꽤 많은 자료가 생산되어 있다[3,5~8]. 그러나 이와 같은 외국의 자료들은 대부분 우리나라와는 다른 토양이나 식생활에 대한 것이므로 한국인의 섭취선량 평가에 사용하기에는 부적절한 점이 많다.

논은 재배 기간 동안 수 cm의 관개수(표면수)로 덮여 있는 것이 보통이므로 토양층으로부터의 뿌리흡수와 함께 작물체 기부를 통한 표면수로부터의 흡수, 즉 기부흡수가 일어날 수 있다[9~11]. 표면수의 오염은 오염된 관개수의 사용이나 대기로부터의 직접 침적뿐만 아니라 오염된 논토양에 대한 관개에 의해서도 일어날 수 있다. 후자의 경우 토양층으로부터 표면수로의 방사성 핵종의 확산·이동 및 썩레질에 의한 교환 등에 기인한다. 따라서 본 연구에서도 표면수로부터의 기부흡수가 일어날 것으로 예상되지만 표면수의 오염도 토양 오염에서 비롯될 것이므로 벼에 대해서도 타 작물과 같이 토양-작물체(쌀알) 전이계수라는 용어를 사용키로 한다.

우리나라의 토양-작물체 전이계수 연구는 1980 년 대 초부

터 한국원자력연구원을 중심으로 몇몇 주요 핵종들에 대해서 수행되어 왔으나 방사성 요오드나 테크네튬에 대해서는 조사가 전무한 실정이다[12]. 이 둘에 속하는 ¹²⁹I와 ⁹⁹Tc는 초장반감기 핵종으로서 방사성 폐기물 처분의 환경영향 평가 시에 중요한 관심 핵종으로 되어 있다[5,6,13~15]. 현재 중저준위 방사성 폐기물 처분장이 건설 중에 있고 고준위 폐기물 처분에 대해서도 사회적 논의가 시작되었으므로 위와 같은 방사성 요오드와 테크네튬의 토양-작물체 전이계수에 대한 환경특성 자료를 시급히 확보할 필요가 있다. 이에 본 연구에서는 경주 중저준위 방사성 폐기물 처분장(이하 방폐장) 주변 논토양에서의 방사성 요오드와 테크네튬의 토양-쌀알 전이계수를 조사하기 위하여 2 년에 걸쳐 벼의 방사성 추적자 흡수 실험을 수행하였다.

II. 재료 및 방법

가. 실험 토양

방폐장 주변 반경 5 km 이내 지역을 대상으로 2 년에 걸쳐 실험 토양을 채취하였다. 2007 년에는 방사성 요오드 전이계수 실험을 위하여 세 곳(대본리, 구길리, 읍천리)의 논에서 토양을 채취하였고 2008 년에는 테크네튬 실험을 위해서 상기 세 곳에 상라리 한 곳의 논을 추가하여 채취하였다. 표 1과 그림 1은 토양을 채취한 논의 위치를 나타내고 있다.

매년 4 월에 삼과 중장비를 이용하여 지표로부터 20 cm 이내에서 논토양을 채취하여 실험온실로 운반한 다음 넓게 펼쳐서 자갈과 작물유체 등을 제거하고 1 주일 이상 자연 건조시켰다. 이렇게 채취, 운반한 토양으로부터 매년 논별로 2 kg 정도씩의 시료를 취하여 약 10 일 간 실내에 넓게 퍼서 충분히 말린 다음에 pH, 유기물 함량, 점토 함량과 같은 토양의

Table 1. Locations of the paddy fields for collecting experimental soils

Field code	Address	Coordinate
GJ-1	Daebon-ri, Gampo	E 129° 29' 34", N 35° 45' 04"
GJ-2	Gookil-ri, Yangbuk	E 129° 27' 46", N 35° 44' 41"
GJ-3	Eopcheon-ri, Yangnam	E 129° 28' 29", N 35° 41' 35"
GJ-4	Sangra-ri, Yangnam	E 129° 26' 59", N 35° 43' 31"

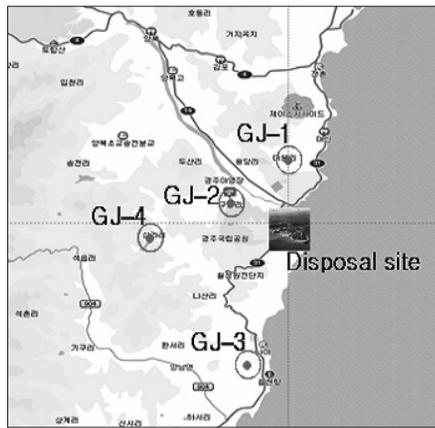


Fig. 1. Map of the paddy fields for soil collection. All of them are within a radius of 5 km from the site.

특성을 조사하였다.

나. 실험작물 육성

벼는 실험온실 내에 배치된 철제 흙상자(가로 30 cm, 세로 30 cm, 높이 40 cm)에서 재배·육성되었다. 흙상자의 바닥에 4 cm 깊이로 쇠석을 깔고 그 위에 촘촘한 그물망을 놓은 다음 건조 토양을 상자 당 30.4 kg씩 담고 표면수의 깊이가 수 cm 정도 되게 관개하여 재배논을 모사하였다. 흙상자의 최하부에 배수공을 뚫고 수도꼭지를 부착하여 필요시 배수할 수 있도록 하였다. 이렇게 준비된 흙상자에 우리나라 장려품종인 주남벼의 모를 이식하였다. 이식일은 5월 22일이었고 재식밀도는 상자 당 16 개체로 네 곳에 각각 네 개체씩 모내기하였다.

모내기 4 일 전, 완숙퇴비와 소석회를 상자 당 각각 90 g 및 10 g씩 살포한 다음 모종삽을 이용하여 표층토와 섞어 주었다. 모내기 하루 전에는 수도용 복합비료(N : P : K=21% : 17% : 17%)를 상자당 3.5 g씩 살포한 다음 같은 방법으로 토양과 섞었다. 이 복합비료는 모내기 후 14, 78, 92 일에 상자 당 1.3 g씩 추비로서 더 공급되었다. 벼의 생육 중 필요에 따라 수 회에 걸쳐 살충제와 살균제를 작물체에 살포하였다. 벼의 출수는 모내기 후 79 일에 시작하였다.

관개는 이식 후 130 일까지 계속되었고 이식 후 55일부터 1 주 간 물을 빼 중간낙수를 실시하였다. 논에서 일어나는 관개수의 지하침투를 모사하기 위해서 매 주 상자 당 3.4 리터의 물을 배수공을 통하여 배수하였다. 이는 우리나라의 논에서 관개기간 동안 하루에 평균 5.5 mm의 관개수가 지하로 침투한다는 보고[16]에 입각한 것이다.

이상은 방사성 요오드 실험에 대한 설명이나 테크네튬 실험의 경우에도 각종 시기만 다소 다를 뿐 전반적으로 위와

같다. 이것은 아래에서도 마찬가지이다. 실험은 방사성 요오드의 경우 3 반복, 테크네튬의 경우 2 반복으로 수행되어 두 실험 모두 각 토양에 대한 대조용 흙상자 한 개씩을 포함, 도합 12 개씩의 흙상자가 소요되었다.

다. 방사성 핵종 처리

실험에 사용한 방사성 핵종은 방사성 요오드의 경우 ^{125}I 였고 테크네튬의 경우 ^{99}Tc 였다. 동위원소 간에는 방사능 붕괴 이외에는 물리·화학적 특성이 동일하므로 ^{125}I 에 대한 실험 결과는 관심핵종인 ^{129}I 에 대해서도 적용할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 분석의 용이성 등을 고려하여 ^{129}I 대신에 ^{125}I 를 사용하였다.

모내기 27 일 전(4월 25일)에 매 상자에 대해 방사성 수용액 30 ml(^{125}I 의 경우 143.0 kBq ml⁻¹, ^{99}Tc 의 경우에는 239.6 kBq ml⁻¹)과 400 g의 건조토양을 반구형 혼합기로 5 분 간 잘 섞어 전혼합토(pre-mix)를 제조한 다음 V 형 토양혼합기를 이용하여 흙상자의 상부 약 20 cm에 해당하는 건조토양(20 kg)과 전혼합토를 10 분 간 섞었다. 일차로 혼합된 20.4 kg의 흙으로부터 70 g씩 세 개의 시료를 채취하여 조사한 혼합 불균일도(^{125}I 감마선 계수치의 평균에 대한 표준편차의 백분율)는 2.9 %에 불과하여 고르게 혼합되었음을 보여 주었다. 위와 같이 조제한 20.4 kg의 오염토를 하부에 쇠석과 비오염 건조토양(10 kg)이 담겨진 흙상자에 바로 담고 9 일 후에 관개하였다.

라. 시료 처리 및 분석

모내기 후 146일(10월 15일)에 지표로부터 약 10 cm 높이에서 낮으로 벼를 베어 작물체를 채취한 다음 이삭을 온실에서 3 주 정도 자연 건조하였다. 건조된 이삭으로부터 낱알을 분리하여 막자사발에 담아 부드럽게 분질러서 껍질(왕겨)을 벗겨내고 쌀알(현미)을 취하였다.

쌀알의 ^{125}I 농도는 한 흙상자에서 얻은 쌀알 시료 전부를 그대로 하나의 계측용기에 담아 HPGe detector (EG&G ORTEC)를 이용한 감마스펙트로메트리법으로 측정하였다. ^{99}Tc 농도는 한 흙상자의 쌀알에 대한 회분 시료를 두 개의 planchet에 200 mg씩 담고 증류수를 가하여 골고루 편 다음 적외선등 하에서 건조시키고 low-background alpha/beta counter (LB-5100, TENNELEC)를 이용한 전베타 계수법으로 각각 측정하여 평균을 취하였다. 여기서 ^{99}Tc 농도는 대조용 흙상자에서 생산된 쌀알의 회분 시료 200 mg에 대해 같은 방법으로 구한 베타선의 background 계수치를 뺀 순계수치로부터 산출하였다. 계측 시간은 ^{125}I 의 경우 시료에 따라

10,000~80,000 초, ⁹⁹Tc의 경우 일률적으로 1,800 초였고 측정 오차는 시료에 따라 전자의 경우 5~10%, 후자의 경우 3~8% 정도였다.

위에서 회분 시료는 쌀알을 믹서기로 갈아서 분말로 만든 다음 Wigley 등[17]의 방법대로 일정량의 분말 시료에 암모니아수(비중 0.88, 1 g의 분말에 3 ml 비율)를 가하고 건조시킨 후 500℃(250℃에서 한 시간 경과 후 서서히 온도 상승)의 전기로에서 12 시간 가열하여 얻었다. 이와 같이 암모니아를 처리하고 회화하면 산화, 증발에 따른 ⁹⁹Tc의 손실을 방지할 수 있는 것으로 보고되어 있다[17].

마. 전이계수 계산

쌀알과 토양 내 ¹²⁵I 및 ⁹⁹Tc 농도로부터 각 핵종의 토양-쌀알 전이계수(TF, dimensionless)를 아래와 같이 계산하였다.

$$TF = \frac{\text{쌀알 내 핵종 농도 (Bq/kg-dry)}}{\text{토양 내 핵종 농도 (Bq/kg-dry)}} \dots\dots\dots (1)$$

식 (1)에서 작물체 내 농도는 수확 시 농도이고 토양 내 농도는 토양과 핵종의 혼합 시 농도를 작물의 수확일 기준으로 붕괴 보정한 것이다. 이에 따른 토양 내 ¹²⁵I와 ⁹⁹Tc 농도는 각각 28.6 kBq kg⁻¹-dry 및 352.4 kBq kg⁻¹-dry였다. 대조 시료 내 ¹²⁵I 농도는 처리 시료에 비해 무시할 수 있는 정도였으므로 고려하지 않았고 대조 시료 내 ⁹⁹Tc 농도는 위에서 background 계수치를 제하는 것으로 이미 고려하였다. 한 토양에 대한 방사성 요오드 및 테크네튬의 쌀알 전이계수는 각각 3 반복과 2 반복의 산술평균과 표준편차로 나타내었다.

III. 결과 및 고찰

가. 핵종별 쌀알 전이계수

① 방사성 요오드 전이계수

방폐장 주변에서 채취한 세 가지 논토양에 ¹²⁵I 용액을 처리하고 조사한 방사성 요오드의 쌀알 전이계수와 실험 토양들의 특성은 표 2와 같다. 쌀알에 대한 방사성 요오드 전이계수는 토양에 따라 1.1×10⁻³~6.4×10⁻³의 범위로 6 배 정도의 변

이를 보였다. 최고치는 GJ-1-07(대본리) 토양에서 나타났고 최저치는 GJ-3-07(읍천리) 토양에서 나타났다.

요오드의 작물체 흡수에 영향을 미치는 중요한 토양 요인은 유기물 함량, 점토 함량 및 pH 등인 것으로 알려져 있다. 대체로 토양의 유기물이나[13,18,19] 점토 함량이 높을수록 요오드의 흡착이 증가하여 전이계수가 감소할 것으로 예상된다[5]. Yoshida 등[20]에 의하면 pH가 낮은 토양에서는 요오드의 토양 흡착이 증대되어 전이계수가 비교적 낮을 가능성이 있다. Ashworth 등[18]은 토양의 pH가 높을 경우 수산 이온과 요오드 이온이 토양 흡착에 대하여 경쟁하게 되고 또한 토양의 순음전하가 증대되어 요오드의 토양 흡착이 감소할 것으로 보았다. 한편, Shinonaga 등[5]은 야외조사에서 곡류에 대한 요오드의 전이계수에 미치는 토양 pH의 영향은 그리 크지 않은 것으로 보고하였다. 또한 Muramatsu 등[21]은 물에 잠긴 토양에서 요오드의 탈착이 증가하는 데 대해서 토양의 pH는 그리 중요한 역할을 하지 않은 것으로 결론지은 바 있다.

본 연구에서는 점토의 경우 위에서 설명한 대로 그 함량이 낮을수록 전이계수가 높았으나 유기물의 경우에는 위와는 달리 그 함량이 높을수록 전이계수가 높았다. 이에 대해서는 토양 간 유기물 함량의 차이는 최대 2 배 이내로 그리 크지 않아 약 3 배 정도의 차이를 보인 점토의 영향에 의해 유기물의 영향이 가려졌을 것으로 추정해 볼 수 있다. 또한 유기물의 총량뿐만 아니라 분해 정도도 중요하므로 GJ-1-07이나 GJ-2-07 토양에 비해 GJ-3-07 토양에 잘 분해된 유기물이 더 많이 함유되었는지도 모른다[13]. 토양 pH의 경우 세 토양 간에 차이가 거의 없었다는 점과 위와 같은 Muramatsu 등[21]의 보고로 볼 때 토양 pH에 따른 전이계수의 차이는 무시할 수 있을 정도였을 것으로 추정된다.

담수상태의 논에서는 미생물과 벼 뿌리의 작용으로 토양 중 산소가 점점 고갈되어 무기(anaerobic) 조건이 되고 환원상태가 발달하여 산화환원전위(Eh)가 크게 감소한다[16,21~23]. 이렇게 되면 토양 기질에 흡착되어 있는 요오드가 주로 Γ 형태로 다량 유리되어 토양 용액 속에 용해되는 것으로 알려져 있다[21,24]. 이와 같이 용해된 요오드는 작물에 그대로 흡수될 수 있다. 따라서 본 연구에서 벼의 ¹²⁵I 흡수량은 비교적 많았을 것으로 추정되나 흡수된 ¹²⁵I의 쌀알로의 이동은 미미했던 것으로 보인다[24,25]. 그러나 본 실험에서 얻은 방사성 요오드의 쌀알 전이계수 값들은 IAEA[3]가 벼 이외의 곡류 종실에 대한 요오드의 전이계수 기대치로 제시한 6.3×10⁻⁴에 비해 대체로 수 배씩 높다. 이것은 이미 설명한 바와 같이 요오드 이온의 유리도가 논 상태에서 밭 상태에 비해 높아지는

Table 2. Transfer factors of radioiodine for rice seeds measured in three different paddy soils

Soil code	Soil properties ^a			Seed ¹²⁵ I concentration (Bq kg ⁻¹ - dry)	Transfer factor ^b
	pH (1:5)	OM (%)	Clay (%)		
GJ-1-07	5.5	4.4	10.2	182.2 ± 20.9	6.4×10 ⁻³ ± 7.3×10 ⁻⁴
GJ-2-07	5.4	3.3	19.9	97.8 ± 14.0	3.4×10 ⁻³ ± 4.9×10 ⁻⁴
GJ-3-07	5.6	2.4	28.2	32.3 ± 15.2	1.1×10 ⁻³ ± 5.3×10 ⁻⁴

^a OM: Organic matter

^b Bq kg⁻¹-dry seeds (brown rice) per Bq kg⁻¹-dry soil.

현상과 관련이 있을 것으로 판단된다.

Muramatsu 등[24]은 ¹²⁵I 추적자 실험을 통하여 담수상태 하에서 벼를 재배한지 6 주 경과 시부터 토양 용액중 ¹²⁵I 농도가 급히 상승하기 시작하여(처음 6 주 간은 토양의 높은 흡착력으로 농도가 매우 낮았음) 13 주 경과 시에 최고였다가 벼 수확 시까지 서서히 감소하였다고 보고한 바 있다. 이와 같이 토양용액 중 요오드의 농도가 크게 상승하여 고농도를 유지하는 시기는 토양에 따라 차이가 있을 수 있다[25]. 벼의 어느 생육 단계에 이러한 시기가 오는가에 따라 쌀알로 전이 되는 요오드의 양이 크게 달라질 수 있을 것이다. 벼 뿌리의 활력이 비교적 왕성하고 쌀알로의 물질 전류가 활발한 시기인 쌀알의 발육 초·중기에 이런 시기가 온다면 쌀알로의 전이가 증가할 것으로 추정된다. GJ-1-07 토양의 경우 이런 이유로 방사성 요오드의 쌀알 전이계수가 다른 토양보다 높아졌을 수도 있다고 본다.

② 테크네튬 전이계수

표 3은 방폐장 주변 네 가지 논토양에 대하여 조사한 테크네튬(⁹⁹Tc)의 쌀알 전이계수와 토양의 특성을 보여 주고 있다. 동일한 논에서 2 년에 걸쳐 채취한 토양의 특성(표 2 및 표 3)에는 큰 변화가 없었다. 경작지 토양의 물리·화학적 특성은 시비, 유기물 및 토양 개량제(석회 등) 살포, 객토 등과 같은 영농 행위와 작물 재배에 따른 무기양분의 감소 및 지하용탈 등의 요인에 의해 동일 장소에서도 매년 달라질 수 있을 것이다.

네 토양에서 쌀알의 테크네튬 전이계수는 $5.4 \times 10^{-4} \sim 2.5 \times 10^{-3}$ 의 범위로 GJ-2-08(구길리) 토양이 가장 높았고 GJ-3-08(읍천리) 토양이 가장 낮았다. 테크네튬은 발과 같은 유기(aerobic) 조건에서는 주로 TcO_4^- 와 같은 산화형으로 존재하여 작물체에 의해 용이하게 흡수되나 논과 같은 무기(anaerobic) 조건에서는 주로 TcO_2 와 같은 환원형으로 변하여 흡수하기 어렵게 된다[6,26~30]. 유기 조건에서는 테크네튬(즉, TcO_4^-)이 부식산과 같은 유기물과 결합하지 않으나 무기 조건에서는 아마도 TcO_2 의 형태로 유기물과 용이하게 결합하여 이동성이 현저히 감소하는 것으로 알려져 있다[6]. 또한 무기 조건에서의 테크네튬의 흡착은 점토 함량이 높고 pH

Table 3. Transfer factors of technetium for rice seeds measured in four different paddy soils

Soil code	Soil properties ^a			Seed ⁹⁹ Tc concentration (Bq kg ⁻¹ - dry)	Transfer factor ^b
	pH (1:5)	OM (%)	Clay (%)		
GJ-1-08	5.5	3.7	11.0	505.8 ± 187.4	$1.4 \times 10^{-3} \pm 5.3 \times 10^{-4}$
GJ-2-08	5.1	4.2	15.4	863.5 ± 240.3	$2.5 \times 10^{-3} \pm 6.8 \times 10^{-4}$
GJ-3-08	5.6	3.0	26.9	191.8 ± 90.5	$5.4 \times 10^{-4} \pm 2.6 \times 10^{-4}$
GJ-4-08	5.1	4.9	25.2	297.5 ± 129.3	$8.4 \times 10^{-4} \pm 3.7 \times 10^{-4}$

^a OM: Organic matter

^b Bq kg⁻¹-dry seeds (brown rice) per Bq kg⁻¹-dry soil.

가 높을수록 증가하는 것으로 보고되어 있다[26]. 본 연구에서 관찰된 토양 간 테크네튬 전이계수의 차이는 이러한 요인들이 복합적으로 작용한 결과인 것으로 볼 수 있다.

위의 설명에 따르면 논외의 경우 유기물과 점토 함량이 낮고 pH가 낮을수록 테크네튬의 전이계수가 높아질 것으로 예상된다. GJ-2-08 토양에서 전이계수가 가장 높은 것은 유기물 함량이 특별히 높지 않으면서 점토 함량이 비교적 낮고 또한 pH가 가장 낮았기 때문인 것으로 사료된다. 한편, GJ-3-08 토양에서 유기물 함량이 가장 낮았음에도 불구하고 전이계수가 가장 낮은 것은 pH와 점토 함량이 가장 높았기 때문인 것으로 보인다. 또한 GJ-3-08 토양의 유기물 함량이 다른 토양에 비해 현저히 낮지는 않았으므로 유기물 함량의 차이에 따른 영향이 크지 않았을 것으로 추정된다. GJ-4-08 토양의 경우 pH가 가장 낮았음에도 불구하고 높은 유기물 함량과 점토 함량으로 인하여 전이계수가 비교적 낮았던 것으로 판단된다.

본 실험에서 구한 테크네튬의 쌀알 전이계수 값은 IAEA[31]가 쌀알 이외의 곡류에 대한 기대치로 보고한 1.3×10^0 에 비해 수 백~수 천 배 낮다. 이것은 IAEA 값이 발작물에 대한 것이기 때문이다. 앞에서 언급한 바와 같이 밭에서는 테크네튬이 산화형으로 존재하기 때문에 환원형으로 존재하는 논에서보다 전이계수가 훨씬 높은 것으로 알려져 있다 [6,8,29,31,32].

한편, 테크네튬의 쌀알 전이계수는 방사성 요오드에 비해 대체로 수 배 정도 낮았다. Muramatsu 등[24,25]과 Yanagisawa 등[31,32]의 보고에 대한 상호 비교를 통해서도 이와 유사한 결과를 얻을 수 있다. 이러한 두 핵종 간 차이는 환원 상태로 인하여 테크네튬의 흡수는 크게 억제되고 방사성 요오드의 흡수는 증대되어 테크네튬의 흡수율이 방사성 요오드보다 낮았든가 아니면 테크네튬의 흡수 후 종실로의 이동률이 방사성 요오드보다 낮았기 때문인 것으로 추정된다. 또한 두 가지 요인이 다 작용했을 가능성도 배제할 수 없다. 테크네튬도 요오드와 마찬가지로 경엽부에 비해 종실로의 전이가 미미한 핵종인 것으로 알려져 있다[31~33].

Table 4. Reported values of the transfer factors of radioiodine and technetium for rice seeds

Nuclide	N ^a	Transfer factor (min. ~max.) ^b	Method ^d	Reference
¹²⁵ I	1	$4.4 \times 10^{-3} \sim 7.6 \times 10^{-3}$ ^c	RE	[24]
¹²⁵ I	2	$2.2 \times 10^{-3} \sim 7.3 \times 10^{-3}$	RE	[25]
¹²⁷ I	14	$1.0 \times 10^{-3} \sim 2.0 \times 10^{-2}$	FS	[8,34]
^{95m} Tc	1	$\leq 5.0 \times 10^{-3}$	RE	[31]
^{95m} Tc	1	$\leq 2.0 \times 10^{-4}$	RE	[32]

^a number of the soils studied

^b Bq kg⁻¹-dry seeds (brown rice) per Bq kg⁻¹-dry soil.

^c minimum and maximum values for four different pot sizes

^d RE: radiotracer experiment; FS: field study.

나. 기존 보고치와의 비교

쌀알에 대한 방사성 요오드와 테크네튬의 전이계수 조사는 주로 몇몇 일본의 연구자들에 의해서 이루어져 왔다. 표 4는 일본에서의 조사 결과를 요약한 것이다.

Muramatsu 등[24,25]이 두 가지 토양으로 수행한 실험(한 토양은 두 번 실험)에서 ¹²⁵I의 쌀알 전이계수는 $2.2 \times 10^{-3} \sim 7.6 \times 10^{-3}$ 의 범위로 본 연구와 큰 차이가 없었다. Takagi 등[34]이 일본 각지에서 수집한 쌀알과 토양 시료에 대한 분석 결과에 의하면 ¹²⁷I(안정 요오드)의 토양-쌀알 전이계수는 최대값과 최소값의 차이가 20 배 정도로 Muramatsu 등[24,25]의 방사성 추적자 실험에 비해 값의 범위가 훨씬 넓었으나 평균은 큰 차이가 없는 것으로 나타났다[8]. 이와 같이 안정 요오드 조사에서 값의 범위가 훨씬 넓었던 것은 토양의 수가 크게 증가하였을 뿐만 아니라 대기에 존재하는 ¹²⁷I의 영향[24,34]도 지역에 따라 차이가 있었기 때문인 것으로 판단된다. 즉, Takagi 등[34]에 따른 최고치 2.0×10^{-2} [8]은 대기로부터의 침적 영향을 크게 받은 값일 가능성이 있을 것으로 추정된다. 대기로부터의 ¹²⁷I 침적과 관련해서는 Muramatsu 등[35]도 해양으로부터 대기를 통하여 유입되는 ¹²⁷I에 의해 토양 중 농도가 크게 높아질 수 있는 것으로 보았다.

Yanagisawa 등[31,32]이 동일한 토양에 대해서 두 번에 걸쳐 같은 방법으로 각기 다른 품종의 벼를 재배하고 수행한 방사성 추적자(^{95m}Tc) 흡수 실험에서 테크네튬의 쌀알 전이계수는 모두 측정 하한치 이하로 조사되었다. 1995 실험[32]에서는 전이계수의 측정 하한치가 2.0×10^{-4} 로 1992 실험[31]에 비해 25 배나 낮았다. 이는 전자에서의 토양 처리 농도가 후자에 비해 9 배 정도 높았고 또한 아마도 전자에서 쌀알 내 ^{95m}Tc의 최소검출가능농도가 후자에 비해 3 배 ($25 \div 9 \approx 3$) 정도 낮았기 때문인 것으로 판단된다. 따라서 1992 년에도 1995 년과 동일한 품종으로 실험했다면 전이계수가 1995 년과 같이 2.0×10^{-4} 이하였을 수 있다. 여기서 전이계수의 품종간 차이[36]를 고려한다고 해도 1992 년 실험에서 전이계수가 2.0×10^{-4} 보다 두세 배 이상 높았을 가능성은 매우 낮을 것으로 보인다.

이상으로 볼 때 본 연구에서의 쌀알에 대한 테크네튬의 전이계수는 Yanagisawa 등[31,32]의 조사 결과에 비해 대체로 수 배 높았다고 할 수 있겠다. 이러한 차이는 그들의 실험에서는 토양의 유기물 함량이 7.6%로 본 연구의 2 배 정도였다는 점과 토양의 종류가 Andosol이었다는 사실에 크게 기인하는 것으로 판단된다. 이는 Andosol 토양은 화산 분출물에서 유래한 것으로 테크네튬에 대한 흡착능이 큰 것으로 알려져 있는 allophane(부정형 점토광물)이 많이 함유되어 있다는

사실에 근거한다[6].

다. 쌀알 전이계수 대표치

핵종의 전이계수는 위에서 본 바와 같이 토양에 따라 크게 다를 수 있지만 특정 부지에 대한 환경영향 평가에 있어서 부지 주변에 분포하는 개별 논외 토양 특성을 일일이 파악하여 고려하는 것은 현실적으로 불가능하다. 따라서 부지 주변의 여러 논토양을 대표하는 하나의 값, 즉 대표치를 결정, 사용할 필요가 있다. 특정 방사성 원소에 대한 토양-작물체 전이계수의 대표치는 흔히 동일한 작물 또는 작물군에 대한 가용 측정치들의 기하평균으로 제시하고 있다[3,7,8].

위의 방식에 따르면 본 연구에서 방사성 요오드 및 테크네튬의 쌀알(현미) 전이계수에 대한 대표치는 각각 2.9×10^{-3} 및 1.1×10^{-3} 으로 제안될 수 있다(표 5). IAEA가 최근에 발간한 모델 파라메타 handbook[3]과 그의 부속 기술서[37]에 따르면 방사성 요오드의 쌀알(현미) 전이계수 대표치는 3.8×10^{-3} 으로 제안되어 있으나 테크네튬에 대해서는 상한치만 제시되어 있다(표 5). 이 값들은 거의 전적으로 위에서 살펴본 일본에서의 조사 결과에 입각하고 있으므로[8] 국내 고유의 자료가 있을 경우에는 가능한 한 사용하지 않는 것이 좋을 것으로 판단된다.

쌀알은 일반적으로 현미를 도정하여 만든 백미 상태로 소비된다. 쌀알을 도정하면 외곽의 호분층이 깎여 나가고 호분층에는 통상 내부에 비해 무기물질이 보다 높은 농도로 축적되어 있으므로 도정을 하면 쌀알 내 핵종의 농도가 감소할 가능성이 크다[8,11,16,34]. Takagi 등[34]의 야외조사 결과에 의하면 백미 내 ¹²⁷I 농도는 현미의 반 정도였다. Muramatsu 등[24]은 도정율이 10%일 때 백미의 ¹²⁵I 전이계수는 현미의 30% 수준이었다고 보고한 바 있다. 한편, Yanagisawa와 Muramatsu[32]가 발벼로 조사한 결과에 의하면 현미에 대한 백미의 ^{95m}Tc 전이계수는 75% 정도였다. 따라서 표 5와 같은 현미에 대한 값을 평가모델에서 사용코자 할 때에는 현미-백미 가공계수(processing factor)를 도입하여 도정에 따른 농도의 감소를 고려해 주어야 한다. 현미-백미 가공계수로는 국내 특성치가 생산될 때까지 다소 보수적으로 방사성 요오드에 대해서는 0.5, 테크네튬에 대해서는 0.8 정도를 사용하는

Table 5. Representative values of radioiodine and technetium transfer factors for rice seeds proposed in two different sources

Source	Representative TF value ^a	
	Radioiodine	Technetium
Present study	2.9×10^{-3}	1.1×10^{-3}
IAEA[3,37]	3.8×10^{-3}	(2.0×10^{-4})

^a for brown rice.

것이 적절할 것으로 판단된다.

제안된 대표치는 경주 방폐장 주변 논토양에 대한 실험 결과에 입각한 것이나 우리나라의 다른 지역에 대해서도 위와 같은 해외의 자료들보다는 적용성이 더 높을 것으로 판단된다. 따라서 현재로서는 방폐장 주변은 물론 다른 지역에 대해서도 보다 나은 대안이 생길 때까지는 본 연구 결과를 적용하는 것이 최선이라고 본다. 여기서 유의해야 할 점은 본 자료는 소수의 토양에 대한 한 번의 실험으로부터 도출된 것이므로 해당 부지에 대해서도 대표성이 충분하다고 보기 어렵다. 따라서 앞으로 경주 부지는 물론 차후 결정될 고준위 폐기물 처분장 부지 주변에 대해서도 조사가 많이 수행될 필요가 있다.

한편, 본 연구에서 전이계수는 작물의 수확시가 아니라 작물을 재배하기 이전인 토양과 핵종의 혼합시 토양 내 핵종 농도를 기준으로 산출한 것이므로 상기의 대표치들도 벼의 모내기 전에 논갈이에 따른 토양과 핵종의 혼합시 농도(단, 수확일 기준으로 붕괴 보정한 것)에 적용해야 할 것이다. 이것은 특히 토양 내에서 이동성이 높아 작물 재배 기간 중 하부로의 이동이 심한 핵종일 경우 중요한 일이다.

IV. 결 론

경주 방폐장 주변 논토양에 대하여 방사성 동위원소 추적자 실험을 수행하고 방사성 요오드 및 테크네튬의 토양-쌀알 전이계수를 측정하였다. 토양 간 전이계수의 차이는 두 핵종 모두 토양의 유기물 및 점토 함량과 pH의 차이에 의한 것으로 설명되었다. 이 세 요인 중 점토 함량의 차이가 보다 중요한 역할을 한 것으로 보였다. 논은 재배기간 동안 물로 포화되어 토양이 환원 상태로 변하므로 테크네튬의 경우 방사성 요오드와 달리 발작물에 비해 전이계수가 크게 낮을 수 있다는 점이 강조되었다.

토양별 전이계수의 측정 결과에 입각하여 경주 부지 및 우리나라 다른 지역에 대한 쌀알 전이계수의 대표치로서 방사성 요오드의 경우 2.9×10^{-3} , 테크네튬의 경우 1.1×10^{-3} 이 제안되었다. 이 값들은 현미에 대한 것이므로 백미에 대해서는 도정에 따른 농도 감소를 고려해야 한다. 위의 제안은 소수의 토양에 대한 일회의 조사 결과에 입각한 것이므로 차후 보다 대표성이 높은 값을 얻기 위하여 지속적으로 노력할 필요가 있다. 특히 고준위 폐기물 처분장 부지가 정해지면 우선적으로 연구가 수행되어야 할 것으로 본다.

감사의 글

이 논문은 교육과학기술부가 시행한 원자력중장기연구개발사업의 결과물입니다.

참고문헌

- [1] International Atomic Energy Agency, Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases, Safety Series No. 57, IAEA, Vienna (1982).
- [2] J. E. Till and H.R. Meyer, Radiological Assessment, U. S. Nuclear Regulatory Commission, NUREG/CR-3332, ORNL-5968 (1983).
- [3] International Atomic Energy Agency, Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments, Technical Reports Series No. 472, IAEA, Vienna (2010).
- [4] 최용호, 임광묵, 황원태, 최근식, 최희주, 이창우, 가동중 원자력 시설 주변 주민의 내부피폭선량 계산을 위한 농산물 내 핵종 농도 평가법 개선, 대한방사선방어학회지, 29, pp. 73-90 (2004).
- [5] T. Shinonaga, M.H. Gerzabek, F. Streble and Y. Muramatsu, Transfer of iodine from soil to cereal grains in agricultural areas of Austria, Sci. Total Environ., 267, pp. 33-40 (2001).
- [6] R. Bennett and N. Willey, Soil availability, plant uptake and soil to plant transfer of ^{99}Tc - A review, J. Environ. Radioactivity, 65, pp. 215-231 (2003).
- [7] H. Velasco, J. Juri Ayub and U. Sansone, Influence of crop types and soil properties on radionuclide soil-to-plant transfer factors in tropical and subtropical environments, J. Environ. Radioactivity, 100, pp. 733-738 (2009).
- [8] S. Uchida, K. Tagami, Z.R. Shang and Y.H. Choi, Uptake of radionuclides and stable elements from paddy soil to rice: a review, J. Environ. Radioactivity, 100, pp. 739-745 (2009).
- [9] T. J. D'souza and K. B. Mistry, Absorption of

- gamma-emitting fission products and activation products by rice under flooded and unflooded conditions from two tropical soils. *Plant and Soil* 55, 189-198 (1980).
- [10] C. Myttenaere, P. Bourdeau and M. Masset, Relative importance of soil and water in the indirect contamination of flooded rice with radiocesium. *Health Physics* 16, 701-707 (1969).
- [11] A. Tsumura, M. Komamura and H. Kobayashi, Behavior of radioactive Sr and Cs in soils and soil-plant system, in: Report of National Institute of Agricultural Science-B. No 36, 57-113 (in Japanese) (1984).
- [12] 최용호 등, 한국인의 섭취 피폭선량 평가를 위한 농작물 핵종 이동인자, 기술보고서, KAERI/TR-1993/2001, 한국원자력연구소 (2001).
- [13] S. C. Sheppard, Interpolation of solid/liquid partition coefficients, Kd, for iodine in soils, *J. Environ. Radioactivity*, 70, pp. 21-27 (2003).
- [14] 성석현, 정의영, 김기홍, "국내 방사성폐기물 특성과 방사성폐기물 처분시설 폐기물 인수기준," 방사성폐기물학회지, 6, pp. 347-356 (2008).
- [15] 이창우, 정근호, 조영현, 강문자, 이완로, 김희령, 최근식, "한국 토양의 99Tc 분석 및 방사능 농도 준위," 방사성폐기물학회지, 7, pp. 25-31 (2009).
- [16] 이은용, 수도작, 향문사, 서울 (1996)
- [17] F. Wigley, P.E. Warwick, I.W. Croudace, J. Caborn and A.L. Sanchez, Optimised method of the routine determination of technetium-99 in environmental samples by liquid scintillation counting, *Analytica Chimica Acta*, 380, pp. 73-82 (1999).
- [18] D.J. Ashworth, G. Shaw, A.P. Butler and L. Ciciani, Soil transport and plant uptake of radioiodine from near-surface groundwater, *J. Environ. Radioactivity*, 70, pp. 99-114 (2003).
- [19] N. Yamaguchi, M. Nakano, R. Takamatsu and H. Tanida, Inorganic iodine incorporation into soil organic matter: evidence from iodine K-edge X-ray absorption near-edge structure, *J. Environ. Radioactivity*, in press (2009).
- [20] S. Yoshida, Y. Muramatsu and S. Uchida, Studies on the sorption of I^- (iodide) and IO_3^- (iodate) onto Andosols, *Water, Air and Soil Pollution*, 63, pp. 321-329 (1992).
- [21] Y. Muramatsu, S. Yoshida, S. Uchida and S. Hasebe, Iodine desorption from rice paddy soil, *Water, Air and Soil Pollution*, 86, pp. 359-371 (1996).
- [22] H. Marschner, *Mineral Nutrition in Higher Plants*, Academic Press, London (1986)
- [23] 조성진, 박천서, 엄대익, 토양학, 향문사, 서울 (1997).
- [24] Y. Muramatsu, S. Uchida, M. Sumiya, Y. Ohmomo and H. Obata, Tracer experiments on transfer of radioiodine in the soil-rice plant system, *Water, Air and Soil Pollution*, 45, pp. 157-171 (1989).
- [25] Y. Muramatsu, S. Uchida and Y. Ohmomo, Root uptake of radioiodine by rice plants, *J. Radiation Research*, 34, pp. 214-220 (1993).
- [26] S. C. Sheppard, M. I. Sheppard and W. G. Evenden, A novel method used to examine variation in technetium sorption among 34 soils, aerated and anoxic, *J. Environ. Radioactivity*, 11, pp. 215-233 (1990).
- [27] G. Echevarria, P.C. Vong and J.L. Morel, Effect of NO_3^- on the fate of $99TcO_4^-$ in the soil-plant system, *J. Environ. Radioactivity*, 38, pp. 163-171 (1998).
- [28] K. Tagami and S. Uchida, Chemical transformation of technetium in soil during the change of soil water conditions, *Chemosphere*, 38, pp. 963-971 (1999).
- [29] D.J. Ashworth and G. Shaw, Soil migration and plant uptake of technetium from a fluctuating water table, *J. Environ. Radioactivity*, 81, pp. 155-171 (2005).
- [30] N. Ishii, H. Koiso, H. Takeda and S. Uchida, Environmental conditions for the formation of insoluble Tc in water ponds located above paddy fields, *J. Environ. Radioactivity*, 99, pp. 965-972 (2008).
- [31] K. Yanagisawa, Y. Muramatsu and H. Kamada, Tracer experiments on the transfer of technetium from soil to rice and wheat plants, *Radioisotopes*, 41, pp. 397-402 (1992).

- [32] K. Yanagisawa and Y. Muramatsu, Transfer of technetium from soil to paddy and upland rice, *J. Radiation Research*, 36, pp. 171–178 (1995).
- [33] S. Denys, G. Echevarria, L. Florentin, E. Leclerc-Cessac and J.-L. Morel, Availability of ^{99}Tc in undisturbed soil cores, *J. Environ. Radioactivity*, 70, pp. 115–126 (2003).
- [34] H. Takagi, T. Kimura, H. Kobayashi, K. Iwashima and N. Yamagata, Transfer of iodine from paddy soil to rice grain, *Hoken-Butsuri*, 20, pp. 251–257 (in Japanese) (1985).
- [35] Y. Muramatsu, S. Yoshida, U. Fehn, S. Amachi and Y. Ohmomo, Studies with natural and anthropogenic iodine isotopes: iodine distribution and cycling in the global environment, *J. Environ. Radioactivity*, 74, pp. 221–232 (2004).
- [36] W. Schimmack, U. Gerstmann, W. Schultz, M. Sommer, V. Tschöpp and G. Zimmermann, Intra-cultivar variability of the soil-to-grain transfer of fallout ^{137}Cs and ^{90}Sr for winter wheat, *J. Environ. Radioactivity*, 94, pp. 16–30 (2007).
- [37] International Atomic Energy Agency, Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments, IAEA-TECDOC-1616, IAEA, Vienna (2009).