

## 최근 한반도 중부 황해안의 Pu 핵종 습식 침착

### Current Wet Deposition of Pu Isotopes in the mid-Yellow Sea Coast of Korea

이상한 · 정창수 · 김석현 · 이광우<sup>1)</sup>  
한국해양연구소 생지화학연구소, <sup>1)</sup>한양대학교 이과대학 지구해양학과  
(1998년 4월 30일 접수, 1998년 10월 30일 채택)

Sang-Han Lee, Chang-Soo Chung, Suk-Hyun Kim  
and Kwang-Woo Lee<sup>1)</sup>  
*Biogeochemistry and Isotopes Laboratory, Korea Ocean Research & Development Institute,  
Ansan 425-600, Korea. <sup>1)</sup>Department of Earth & Marine Sciences, Hanyang University,  
Ansan 425-791, Korea*

(Received 30 April 1998; accepted 30 October 1998)

### Abstract

<sup>239+240</sup>Pu concentrations in precipitation were determined for the period of May 1994 to August 1996 in order to describe current <sup>239+240</sup>Pu deposition at the mid-western coast of Korea (Ansan, 37° 17' N, 126° 50' E). <sup>239+240</sup>Pu concentration in daily precipitation varied from 0.05 to 131 μBq kg<sup>-1</sup> with a geometric mean of 1.26 μBq kg<sup>-1</sup>. The concentration was high in the period of Yellow Sand Storm in spring and low in wet summer monsoon. The specific <sup>239+240</sup>Pu concentration in daily precipitation appears to be controlled by the <sup>239+240</sup>Pu input to the atmosphere in spring and washout effects by precipitation in the wet summer monsoon. Wet depositional flux of <sup>239+240</sup>Pu varied from 4 to 1231 μBq m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup> with a geometric mean of 33.8 μBq m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup> and with a maximum in the period of Yellow Sand Storm and a minimum in the period of wet summer monsoon. <sup>238</sup>Pu/<sup>239+240</sup>Pu activity ratios (0.04~0.31) in precipitation for March-June period suggested that one of the major sources of Pu isotopes falling in Ansan area is the arid region of the Chinese continent.

**Key words :** <sup>239,240</sup>Pu, wet deposition, Ansan, Korea

### 1. 서 론

대기 중의 화학물질의 습식 및 건식 침착 과정은 대상 화학물질의 물리, 화학적 특성 이외에 대기분진 함량, 강수량과 기온 등 기후조건에 의하여 지배

된다. 대기 중 Pu 핵종은 1945년 이후 핵물질이 무기개발 등 군수산업 및 인공위성 추진 연료 등 민간산업에 사용되면서 그 부산물로 대기로 방출이 되었다(Hamilton *et al.*, 1996). Pu 동위원소 중 방사능과 생물독성으로 환경적으로 주요한 핵종은 <sup>238</sup>Pu ( $t_{1/2} = 87.7$ 년), <sup>239</sup>Pu ( $t_{1/2} = 2.41 \times 10^4$ 년), <sup>240</sup>Pu ( $t_{1/2} =$

6571년)이다(Baskaran *et al.*, 1995). 일반적으로 대기 중 핵무기 시험에 의하여 생성된 Pu는 입자에 흡착되어 약 1.7년 이내에는 지표나 해상에 침착된다(Miyake *et al.*, 1970). 이러한 장수명 핵종들은 토양과 해양에 축적되고 식물에 흡수되어 먹이 연쇄를 통하여, 또는 지하수의 오염 등을 통하여 최종적으로 생태계에 영향을 줄 수 있다.

따라서 Pu 핵종의 지상 침착율은 대부분의 나라에서 지속적으로 감시를 수행하여 왔다. 대기 중 핵무기 시험 부산물의 지상 침착은 1945년에 시작되어 1962년 대기중 핵무기 시험 금지기에 최고에 달하였다가 1980년 중국의 시험을 끝으로 급격히 감소하였다. 일본 기상연구소의 장기관측에 의하면 1985년 이후에는  $^{239+240}\text{Pu}$  침착율은 약  $0.2 \text{ mBq m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ 로 매년 감소되지 않고 거의 일정하게 유지되고 있다(Hirose, k. 일본기상연구소, 미발표자료). 따라서 최근 지상에 침착되는 인공방사성 핵종은 성층권에서 유래하기보다는 주로 인근 토양에서 재부유한 것으로 판단되며 특히 중국대륙의 황사에서 기인하는 것이 적지 않을 것으로 추론되었다(Igarashi *et al.*, 1996). 특히 우리 나라는 일본 동경보다 약 1000 km 이상 중국대륙에 근접하여 존재하므로 중국 대륙기원의 분진의 영향을 더 많이 받을 것으로 사료된다. 중국 대륙기원  $^{210}\text{Pb}$ 의 대기 중 함량과 지상 침착율이 태평양에서 아시아 대륙으로 접근할수록 증가하는 것으로 보고되었다(Tsunogai *et al.*, 1985; Turekian *et al.*, 1977). 따라서 우리 나라의 지상 및 인근 해상에서의 침착율을 조사하기 위한 일련의 연구로서 한반도 중부 서해안에서 강수 중 Pu 핵종의 함량을 조사하였다.

## 2. 재료 및 분석

한반도 중부 경기도 안산의 서해안에 위치한 한국해양연구소( $37^{\circ}17'N$ ,  $126^{\circ}50'E$ )의 지상(해발 7 m)으로부터 10m 상부에 위치한 건물의 옥상에  $1.5 \times 1.8 \text{ m}$ 의 PVC로 제작한 뚜껑이 열린 형태의 상자형 강수 채취기를 설치하여 강수 시마다 약 50~100 리터를 채취하였다. 채취기는 미리 산으로 세척하여 밀봉하여 두었다가 강수기간에만 뚜껑을 열어 강수만을 채취하였다. 채취기간은 1994년 5월부터 1996년 8월이었다. Pu 화학분석에는 50 리터 이상의

강수를 사용하였다. 채취된 시료는 미리 산으로 세척한 20 리터들이 플라스틱 용기에 넣고 6N HCl을 첨가하여 pH를 2 이하로 조정하여 Pu이 용기 벽에 흡착되지 못하도록 하였다. 강수 중 입자를 제거하기 위하여 별도의 여과를 하지 않았다. 따라서 여기서 보고하는 Pu 핵종 함량은 강수 중 “산-용해 분”이나 입자태에서 대부분 용출이 되므로 총량으로 볼 수 있을 것이다(Nozaki *et al.*, 1998).

Pu 핵종의 분리 및 정량은 원 시료에  $^{242}\text{Pu}$  회수율 추적자를 넣어 1일 정도 평형에 도달하도록 하였다. Pu 핵종은 망간 수산화물과 함께 10N NaOH 용액으로 pH를 9~10으로 하여 공침 시켰다. 공침물은 8N  $\text{HNO}_3$  용액으로 용해하고  $\text{HNO}_3$  조정된 AG1  $\times 8$  음이온 교환수지로 망간, 철, 토륨 등을 먼저 분리시키고 최종적으로 Pu를 분리시켰다. 분리된 Pu는 스텐레스강판에 전기 장착하여 다중과도 분석 계가 장착된 PIPS 검출기에 넣고 진공상태에서 알파스펙트로미터로 계수 하였다(이상한 등, 1999; Wong *et al.*, 1994).  $^{238}\text{Pu}$ 과  $^{239+240}\text{Pu}$  분석방법의 정밀도는 2.1%, 정확도는 98.6% 이상(Kang *et al.*, 1997), 검출 하한치는  $0.2 \mu\text{Bq kg}^{-1}$ 이다(Joint Report, 1997).

## 3. 결과 및 고찰

안산에서의 강수량, Pu의 비함량(specific concentration)과 일일 침착량은 표 1에 나타내었다. 1994, 1995, 1996년의 연간 강수량은 각각 985.5, 1655.7과 952.0 mm로서 1960년에서 1996년까지의 36년간의 평균 강수량  $1150+264 \text{ mm}$  (Kim *et al.*, 1998)에 비하여 1994년과 1996년은 평년에 해당되며 1995년은 습한 해에 해당된다. 1994~1996년 안산지역의 일일강수량의 변화는 그림 1에 나타내었다. 일반적으로 연중 강수량의 2/3 이상은 6~9월의 여름 몬순기간에 집중된다. 안산지역의 기후는 습한 여름과 건조한 겨울이 특징인 동북아시아 몬순으로 특징 지워진다. 건조기는 대륙에서 건조하고 차가운 기단이 동진하기 때문에 발생된다. 그리고 우기는 해양으로부터의 습한 기단이 안산지역으로 진입하기 때문에 발생된다. 아시아 몬순은 서태평양의 온난풀(pool)의 계절적인 열 이동에 의하여 발생한다(Kim, 1996; Johnson *et al.*, 1987). 또한 태풍이 한반

Table 1. Pu isotopes in precipitation over Ansan, mid-western Yellow Sea coast of Korea.

			rain ( $\mu\text{m}$ )	$^{239+240}\text{Pu}$ ( $\mu\text{Bq/kg}$ )	$^{238}\text{Pu}$ ( $\mu\text{Bq/kg}$ )	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ activity ratio	$^{239+240}\text{Pu}$ ( $\mu\text{Bq/m}^2/\text{day}$ )
1	1994	03-May	26.9	2.51±0.58			67.5±15.6
2		14-May	40	1.06±0.34			42.4±13.6
3		15-May	20.6	0.71±0.21			14.6±4.3
4		30-Jun.	59.6	1.28±0.41			76.3±24.4
5		01-Jun.	43.8	1.17±0.21			51.2±9.2
6		01-Aug.	52.8	0.63±0.24			33.3±12.7
7		10-Aug.	58.5	0.34±0.15			19.9±8.8
8		28-Aug.	101.3	1.45±0.55			146.9±55.7
9		02-Sep.	22.5	1.88±0.37			42.3±8.3
10		12-Oct.	71.3	0.51±0.18			36.4±12.8
11		10-Mar.	4.3	1.08±0.25			4.6±1.1
12		22-Apr.	25.6	1.16±0.26			29.7±6.7
13	1995	10-Mar.	8.3	1.03±0.6			8.5±5.0
14		22-Apr.	15	5.07±0.61			76.1±9.1
15		13-May	9.8	78.13±5.19	4.17±1.08	0.053±0.014	765.7±50.9
16		20-May	21.2	2.88±0.41			61.1±8.7
17		03-Jun.	22.1	4.58±0.69	1.42±0.38	0.310±0.095	101.2±15.2
18		18-Jun.	8.6	1.86±0.62			16.0±5.3
19		01-Jul.	44.1	0.56±0.25			24.7±11.0
20		03-Jul.	4.3	33.39±3.53			143.6±15.2
21		08-Jul.*	29.1	0.41±0.16*			11.9±4.7
22		09-Jul.*	24.2	0.41±0.16*			9.9±3.9
23		10-Jul.*	98.2	0.41±0.16*			40.3±15.7
24		11-Jul.	18.8	2.12±0.35			39.9±6.6
25		13-Jul.	48.2	1.48±0.29			71.3±14.0
26		18-Jul.	48.7	0.68±0.18			33.1±8.8
27		01-Aug.	10.6	1.02±0.42			10.8±4.5
28		08-Aug.	180.6	0.25±0.13			45.1±23.5
29		19-Aug.	227.3	0.05±0.05			11.4±11.4
30		20-Aug.	49.5	0.29±0.07			14.4±3.5
31		24-Aug. (Typhoon	91.8	0.3±0.08			27.5±7.3
32		26-Aug. Janis)	69.1	0.5±0.13			34.6±9.0
33	1996	16-Mar.	25.5	5.83±0.43			148.7±11.0
34		21-Mar.	16.8	4.13±0.34	0.42±0.11	0.102±0.028	69.4±5.7
35		29-Mar.	18.6	1.42±0.18			26.4±3.3
36		30-Mar.	13.1	1.42±0.18			18.6±2.4
37		16-Apr.*	5.5	131±3.65*	4.58±0.45	0.03496±0.004	720.5±20.1
38		17-Apr.*	9.4	131±3.65*			1231.4±34.3
39		29-Apr.	10.4	3.16±0.29			32.9±3.0
40		30-Apr.	20.8	3.16±0.29			65.7±6.0
41		17-Jun.	153.6	0.4±0.11			61.4±16.9
42		24-Jun.	24.9	1.21±0.26			30.1±6.5
43		27-Jun.*	8.5	0.83±0.17*			7.1±1.4
44		28-Jun.*	5.8	0.83±0.17*			4.8±1.0
45		04-Jul.	56.6	0.29±0.13			16.4±7.4
46		15-Jul.	44.2	0.1±0.06			4.4±2.7
47		21-Jul.	19.5	0.18±0.08			3.5±1.6
48		26-Aug.*	33.5	0.56±0.13*			18.8±4.4
49		27-Aug.*	32.4	0.56±0.13*			18.1±4.2
Range				0.05~131			3.5~1231.4
mean (geometric)				1.26			33.8

\*consecutive rain

도 서해안을 7~8월 기간에 수회 내습하기도 하며 다량의 강수(평균 13 mm h<sup>-1</sup>)를 동반한다(봉중현, 1996).

### 3.1 강수 중 <sup>238</sup>Pu과 <sup>239+240</sup>Pu 함량의 분포

1994년 5월부터 1996년 8월까지의 조사기간동안 총 강수 횟수 중 약 20%를, 그리고 총 강수량으로는 약 61%를 채취하였다. Pu 함량을 분석하기 위하여서는 채집한 강수량이 50 리터 이상이 되어야하고, 여기서 채택한 강수채취 방법은 자동이 아닌 수동이므로 강수량이 충분하지 않은 경우나 인력의 부족 등으로 11~2월의 4개월에는 시료를 채취하지 못하였다. 강수 중 <sup>239+240</sup>Pu 함량은 0.05~131 μBq kg<sup>-1</sup>이며 기하평균은 1.26 μBq kg<sup>-1</sup>이다(표 1). 총 44개 시료 중 3개가 나머지 시료의 평균값보다 1~2차수가 높기 때문에 여기서는 기하평균을 취하였다. 강수 중 <sup>239+240</sup>Pu 함량의 최솟값은 장마기인 1995년 8월 23~24일에서, 최대값은 황사 출현시의 1996년 4월 16~17일에 나타났다. <sup>238</sup>Pu의 함량은 0.4~4.6 μBq kg<sup>-1</sup>의 범위이고 <sup>239+240</sup>Pu의 함량이 4 μBq kg<sup>-1</sup>보다 높은 경우 중 4회에서만 검출이 되었다. <sup>239+240</sup>Pu 함량의 출현빈도 분포를 보면 90%가 10배수 이내에 분포한다(그림 2). 강수 중 <sup>239+240</sup>Pu 함량은 대체로 일일 강수량이 적은 4월에 높고 일일 강수량이 많은 8월에 최소이다(그림 3). 이러한 이유 중의 하나는 Pu 공급율과 강수량의 변화에 기인하는 것으로 사료된다. 강수량 변화에 대한 강수 중 Pu 함량의 변화는 강수의 세정효과이다. 일반적으로 초기 강수가 대기 중의 분진을 흡수하여 제거함으로써 대기 중의 분진 입자수는 감소하기 때문에 갈수기의 강수에는 Pu 함량이 높고, 강수가 빈번하고 연속적인 장마기에는 세정효과에 의하여 대기 중 Pu 함량이 크게 낮아지기 때문에 강수에는 Pu 함량이 낮은 것으로 사료된다. 대기로의 Pu 공급율의 변화는 다음에 설명을 할 예정이다.

안산에서 관측된 <sup>239+240</sup>Pu의 비함량을 강수량과 대비하여 도식하면 그림 4와 같다. 강수 중 <sup>239+240</sup>Pu 비함량은 일일 강수량이 25 mm 이하에서는 일일 강수량과 반비례적으로 그리고 일일 강수량이 25~100 mm에서는 무관하고, 일일 강수량이 150~225 mm에서는 강수량의 증가에 따라서 감소하는 경향을 보인다. <sup>239+240</sup>Pu의 비함량과 강수량의 선형 상관

관계는 매우 불량(r=0.22) 하였으나 반-로그 척도로 대비하면 강수량에 대하여 역의 음의 상관관계가 존재한다(r=0.53, p<0.001, 그림 4). 그러나 그 상관관계가 매우 높지 않은 것은 강수량에 의한 희석효과가 안산지역에 하강하는 강수의 <sup>239+240</sup>Pu의 비함량을 결정하는 단일 인자는 아니라는 사실을 의미한다. 이러한 사실은 성층권에서 대류권으로 공급되는 천연 방사성 핵종 <sup>7</sup>Be(t<sub>1/2</sub>=53.3일)과 육지에서 대류권으로 입력된 <sup>222</sup>Rn(t<sub>1/2</sub>=3.825일)의 붕괴산물인 <sup>210</sup>Pb(t<sub>1/2</sub>=22.1년)의 습식 강하의 경우에도 같은 현상이 관측이 되었다(Kim et al., 1998).

강수의 <sup>238</sup>Pu/<sup>239+240</sup>Pu 방사능비는 주로 1995년 5~6월, 1996년 3~4월에 관측이 되었으며 그 범위는 0.04~0.31이다. 일반적으로 <sup>238</sup>Pu/<sup>239+240</sup>Pu 방사능비는 Pu 생성공정에 따라 특정한 값을 가지므로 Pu 핵종의 기원을 밝히는 데 도움이 될 수 있다. 예를 들면 SNAP 위성 추락에 의한 <sup>238</sup>Pu을 포함한 전 지구평균 대기낙진의 경우 0.030(1993년), 핵연료 재처리시설의 배출폐기물이나 다른 원자로, 핵무기 폭발 인접지에서는 대략 0.29~0.46이고(Baskaran et al., 1995), 한반도의 표준토양은 0.020~0.052(이상한 등, 1999; Lee et al., 1997)이다. 물론 주위 환경에 존재하는 총 <sup>238</sup>Pu 중 1/3은 SNAP 위성의 케도진입 미수로 미세 <sup>238</sup>Pu산화물로서 대기 중에 입력이 되었고 미세 <sup>238</sup>Pu은 중성 pH에서도 <sup>239</sup>Pu 산화물보다 약 200배나 더 많이 녹는다(Suchanek et al., 1996). 따라서 <sup>238</sup>Pu/<sup>239+240</sup>Pu 비는 표준토양에 Pu 핵

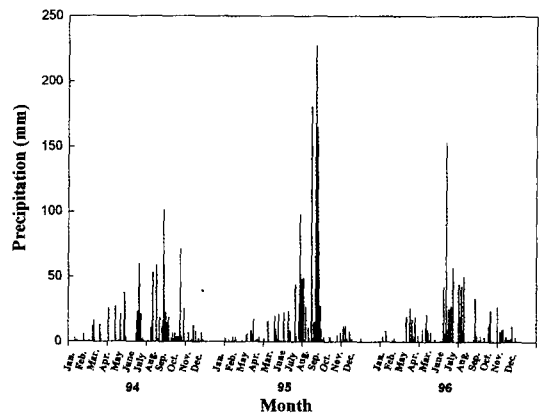


Fig. 1. Temporal precipitation in 1994~1996 at Ansan, Korea.

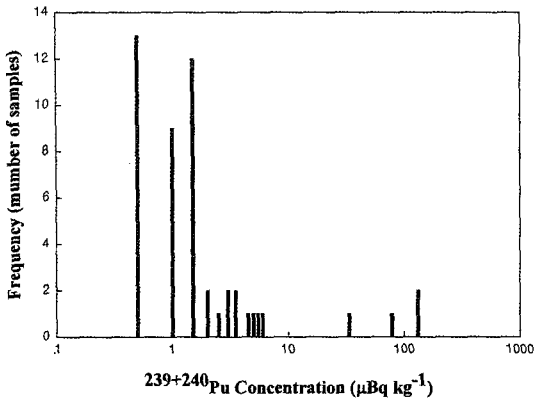


Fig. 2. Frequency distribution of the specific  $^{239+240}\text{Pu}$  concentration in precipitation ( $\mu\text{Bq kg}^{-1}$ ) at Ansan (1994~1996).

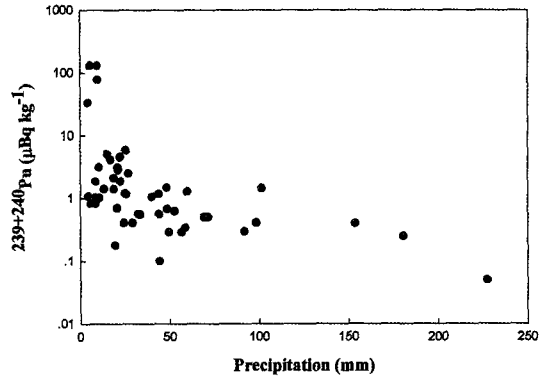


Fig. 4. Specific concentration of  $^{239+240}\text{Pu}$  ( $\mu\text{Bq kg}^{-1}$ ) versus amount of precipitation at Ansan, Korea.

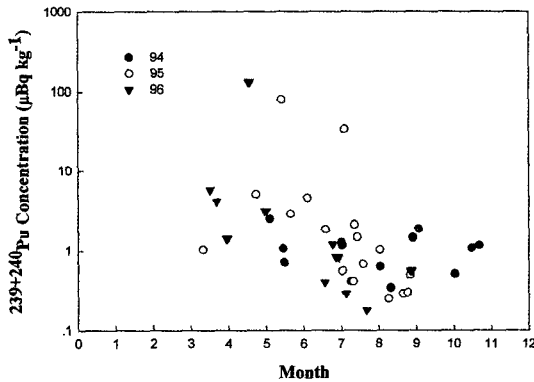


Fig. 3. Temporal variation in specific  $^{239+240}\text{Pu}$  concentration in precipitation at Ansan (1994~1996).

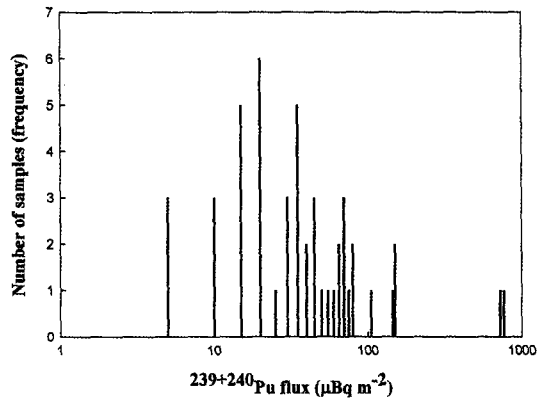


Fig. 5. Frequency distribution of wet depositional flux of  $^{239+240}\text{Pu}$  ( $\mu\text{Bq m}^{-2} \text{d}^{-1}$ ) at Ansan, Korea.

종이 침착되고 난 이후에도 변화될 수는 있다. 앞으로 이에 대한 자세한 조사 연구가 필요하다.

### 3.2 안산지역의 습식 $^{239+240}\text{Pu}$ 의 침착율

습식  $^{239+240}\text{Pu}$  침착율(flux)은  $3.5 \sim 1231.4 \mu\text{Bq m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 이며 기하평균은  $33.84 \mu\text{Bq m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 이다(표 1). 총 44개 시료 중 6개가 나머지 시료의 평균값보다 1~2차수가 높기 때문에 여기서는 기하평균을 취하였다.  $^{239+240}\text{Pu}$ 의 습식침착율의 최소값은 장마기인 1996년 7월 15일에서, 최대값은 황사출현시의 1996년 4월 16~17일에 나타났다.  $^{238}\text{Pu}$ 의 습식침착율은

1995년 5~6월과 1996년 3~4월에  $7.1 \sim 40.9 \mu\text{Bq m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 이다.  $^{239+240}\text{Pu}$  습식침착율의 출현빈도 분포를 보면 87%가 10배수 이내로서  $100 \mu\text{Bq m}^{-2} \text{d}^{-1}$  이하이다(그림 5). 습식  $^{239+240}\text{Pu}$  침착율은 대체로 4월에 높고 8월에 최소이고(그림 6),  $^{239+240}\text{Pu}$ 의 비함량의 시간적 분포(그림 3)와 비슷하다.

안산에서 관측된 습식  $^{239+240}\text{Pu}$  침착율(flux)과 일일 강수량을 대비하여 도식하면 그림 7과 같다. 강수량이 약 50 mm 이상에서의 침착율은 강수량과는 거의 무관하나 일일 강수량이 150 mm 이상에서는 감소하는 경향을 보인다. 같은 지역에서 천연방사성 핵종  $^7\text{Be}$ 과  $^{210}\text{Pb}$ 의 습식침착율은 강수량 20 mm 이

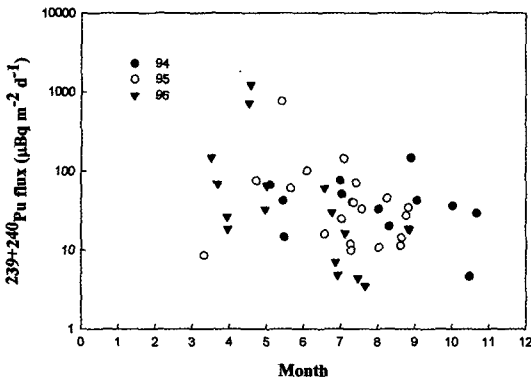


Fig. 6. Temporal variation in wet depositional flux of  $^{239+240}\text{Pu}$  ( $\mu\text{Bq m}^{-2} \text{d}^{-1}$ ) at Ansan, Korea.

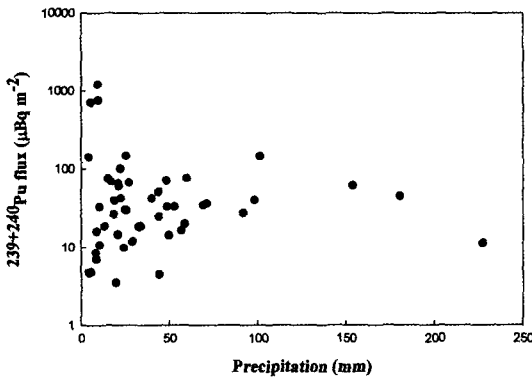


Fig. 7. Wet depositional flux of  $^{239+240}\text{Pu}$  ( $\mu\text{Bq m}^{-2} \text{d}^{-1}$ ) versus the amount of precipitation at Ansan, Korea.

상에서의 일일 강수량과는 무관한 것으로 발견되었다 (Kim *et al.*, 1998). 그러나 일일 강수량 50 mm 이하에서는 강수량과 습식  $^{239+240}\text{Pu}$  양의 침착율간에는 상관관계가 없는 것으로 보인다(그림 7). 이는 안산에서 일일 강수량 20 mm 이하에서 일일 강수량과  $^{210}\text{Pb}$ 과  $^7\text{Be}$  습식 침착율간에 양의 지수적 상관관계가 관찰된 사실 (Kim *et al.*, 1998) 과는 다른 현상이다. 이러한 사실은 연속적으로 대류권으로 입력되는 우주기원  $^7\text{Be}$ 과 육상기원  $^{210}\text{Pb}$ 과는 달리 Pu 핵종은 연속적으로 공급되지 않기 때문으로 사료된다. 특히 4월과 5월의 춘계에 일일 강수량이 10 mm 이하에서  $^{239+240}\text{Pu}$  침착율이  $700 \mu\text{Bq m}^{-2} \text{d}^{-1}$  이상으로 높게 나타난 것은 특기할 만한 사항이다.

Hirose and Sugimura (1984)에 의하면 대기분진의 Pu은 입자형태로 존재하고 증류수에 대한 용해도는 미세입자( $<10 \mu\text{m}$ )에 흡착된 Pu의 경우  $<8\%$  이하고 거대입자( $>10 \mu\text{m}$ )에 흡착된 Pu은  $<1\%$ 이다. 그리고 8M  $\text{HNO}_3$  용액에 대하여 미세 입자( $<10 \mu\text{m}$ )에 흡착된 Pu의 경우 86+17%이고 거대입자( $>10 \mu\text{m}$ )에 흡착된 Pu은 14+17%이다. 즉 pH가 감소하면 Pu의 용해도는 증가한다. 대체로 안산에 내리는 연중 강우의 pH는 3.8~7.25이다(홍기훈, 미발표자료). 따라서 pH가 낮은 동계와 춘계에는 강수의 총 Pu 함량 중 용존형태의 비율이 pH가 높은 시기에 비하여서는 증가할 것으로 사료되나 강수 중의 Pu은 대부분이 입자형태일 것으로 판단된다. Pu의 강수 중에서 용존형태와 입자형태간의 분배에 관하여서는 잘 알려져 있지 않으나 연간 상당량의 Pu 침착이 습식형태이므로 이는 향후 중요하게 조사되어야 할 것이다. 참고로 Pu의 해수와 해저퇴적물간의 분배계수 ( $K_d$ )는  $1 \times 10^4 - 10^6$ 이다 (IAEA, 1985).

### 3.3 안산 강수의 Pu의 기원

안산지역을 포함한 한반도의 계절별 강수 지배기단의 기원은 겨울과 봄에는 중국 등 동북아 대륙으로 북북서풍이 주이며 여름에는 태평양과 황동중국 해로서 남남동풍이 지배적이다. 중국의 황사가 주로 이동되는 850 HPa 상의 후진형계도는 대체로 10월부터 5월까지 뚜렷하게 존재한다(기상청, 1994~1996; 기상연구소, 1995). 특히 본 조사기간중 1995년과 1996년 봄에 강수 중의 Pu 비함량이 매우 높게 나타났다(표 1). 육상기원  $^{210}\text{Pb}$ 의 강수 중 함량도 1993년 봄 황사 발생기에 다른 시기에 비하여 높았다(Kim *et al.*, 1998).

대기 중 핵무기 실험이 활발하던 1945~1980년 기간동안 북반구에서는 Pu 핵종의 침착량이 다른 계절에 비하여 춘계에 가장 높았다. 이는 핵무기 실험으로 발생한 대부분의 인공방사성 핵종이 성층권으로 입력되었고, 성층권 대기가 대류권으로 강하하는 춘계에 방사성 핵종도 함께 지상으로 강하하기 때문이다. 성층권에서의 인공방사성 핵종의 평균 체류 기간은 약 1.7년이다. 그리고 성층권 대기가 주로 대류권으로 강하하는 중위도 지방이 다른 지방보다 더 높은 지상 침착량을 보였다(Hamilton *et al.*,

1996). 그러나 본 조사기간은 1994~1996년으로 1980년 10월 중국의 핵실험을 마지막으로 대기 중 핵실험이 중지된 지 14년이 경과하여 현재에는 성층권에 잔류하는 양이 거의 없다. 다만 현재 가장 주요한 Pu 근원으로는 중국대륙기원의 분진과 재부유된 조사 주변지역의 토양이다.

시료채취 장소가 지상에서 10 m 이상의 고도에 위치하여 있어서 인근 토양으로 부터의 재부유로 인한 토양 Pu이 강수의 총 Pu 함량에 미치는 기여는 낮을 것으로 보인다. Thein *et al.* (1980)는 모나코 해안가의 지붕에 설치한 강수 채취기로 강수의  $^{239+240}\text{Pu}$  함량을 조사한 결과 강수의 총  $^{239+240}\text{Pu}$  함량 중 인근 지역 기원 분진의 기여는 매우 강한 바람이 부는 경우에도 0.8% 이하였다고 보고하였다. 안산지역의 평균 풍속은 Mistral이 강하게 부는 모나코가 위치한 지중해 북부 해안보다 약할 것으로 사료되나 향후 강수의 총 Pu 함량에 기여하는 인근 토양의 재부유 성분의 기여에 관한 상세한 연구가 필요하다.

강수 중  $^{239+240}\text{Pu}$  함량의 최소값은 장마기에, 최대값은 황사출현시의 춘계에 나타났고, 또한 4월과 5월의 춘계에 일일 강수량이 10 mm 이하에서  $^{239+240}\text{Pu}$  침착율이  $700 \mu\text{Bq m}^{-2} \text{d}^{-1}$  이상으로서 출현 빈도는 6%이나 강수 중  $^{239+240}\text{Pu}$  함량이 매우 높게 나타난 사실은 황사가 크게 기여함을 의미한다. 우리나라의 연간 총 분진 침착량 중 황사를 포함한 중국 기원의 분진이 약 29~46%를 차지하고 특히 황사발생 직후에는 강수를 동반하는 경우가 많으므로 황사는 현재 Pu 강하의 가장 중요한 공급원으로 작용할 것으로 사료된다(이상한 등, 1999). 황사는 1964년부터 1980년까지의 중국의 대기 중 핵무기 시험장소인 타클라마칸사막과 고비사막에서 발생하고 황사의 발생시기에 강수 중 Pu 함량이 높으며(최고  $131 \mu\text{Bq kg}^{-1}$ , 표 1) 또한 강하 분진량도 높다. 강수 중  $^{239+240}\text{Pu}$  함량을 조사 보고한 경우에는 최근에는 매우 드물다. 국제원자력기구(IAEA)의 해양환경연구소가 위치한 모나코 해안에서 관측한 자료와 비교하면 다음과 같다. 안산 강수 중  $^{239+240}\text{Pu}$  최고 함량은 1986년 4월 26일의 Chernobyl 원자력발전소 사고 전인 1985년 평균과 1986년 1~4월의  $40 \mu\text{Bq kg}^{-1}$  보다 높고 사고 직후인 1986년 5월의 강수 중  $^{239+240}\text{Pu}$ 의  $300 \sim 600 \mu\text{Bq kg}^{-1}$  과 같은 차수이다

(IAEA, 미발표자료). 호주의 핵무기 시험장으로 1955~1963년 동안 사용된 Maralinga 사막에서는 1987~1988년의 대기 중  $^{239}\text{Pu}$  함량이 대체로  $< 1 \times 10^{-4} \text{Bq m}^{-3}$  이하이나 수일간 최고  $2 \times 10^{-2} \text{Bq m}^{-3}$  도 관측된 바 있다(Johnston *et al.*, 1993). 이는 1979년 일본 지상의 대기 중  $^{239+240}\text{Pu}$  함량의 최대값인  $0.8 \times 10^{-6} \text{Bq m}^{-3}$  (Hirose and Sugimura, 1984)에 비하여서는 100배 이상 높은 값이다. 중국 핵무기 시험장소의 Pu 핵종의 주위환경 함량은 잘 알려져 있지 않다. 그러나 본 조사에서 관측된 춘계의 Pu 핵종의 높은 농도와 침착율은 중국대륙 건조대로부터 발원한 황사 등에 Pu 핵종이 흡착되어 편서풍을 타고 한반도로 이동되었을 가능성이 매우 높은 것으로 사료된다.

### 3.4 연간 $^{239+240}\text{Pu}$ 침착율

지표면에 도달하는 낙하 방사성 핵종(fallout radionuclides)의 침착율은 강수 중의 함량과 강수량 모두에 의존되므로 월별 침착율을 강수 중 부피가 중 Pu 함량 평균과 월별 강수량을 근거로 추정하면 1994, 1995, 1996년은 각각  $1.3, 5.4, 3.5 \text{mBq m}^{-2} \text{yr}^{-1}$  이다. 연간 변동은 황사발생 횟수와 황사발생시와 강수의 일치여부가 빚어낼 것으로 사료되나 향후 좀더 많은 자료가 축적된 후에야 정확한 보고가 가능할 것이다. 최근 1994~1996년 안산의 연간  $^{239+240}\text{Pu}$  습식 강하량은 1979년 Monaco의 습식 제거량  $299.7 \text{mBq m}^{-2} \text{yr}^{-1}$  (Thein *et al.*, 1980)의 약 1/100에 해당하는 값이다.

참고로 연간 안산지역의 총  $^{239+240}\text{Pu}$ 의 총 침착량은  $6.3 \sim 8.1 \text{mBq m}^{-2} \text{yr}^{-1}$ 으로(이상한 등, 1999) 연간 강수량에 따라서 습식 침착량이 총 침착량에서 차지하는 비중은 16~86%가 될 것이다.

## 4. 결 론

한반도 중부 서해안에 위치한 경기도 안산의 최근 Pu 핵종의 습식 제거율이 1994~1996년 기간 동안 조사되었다. 본 조사에서 주요한 발견은 다음과 같다.

(1) 강수 중  $^{239+240}\text{Pu}$  함량은  $0.05 \sim 131 \mu\text{Bq kg}^{-1}$ 이며 최소값과 최대값 장마기와 황사출현기에 출현하였으며 최대값은 Chernobyl 사고시의 유럽에서 관

측된 값과 같은 차수로서 높다. 그리고 비함량의 기하평균은  $1.26 \mu\text{Bq kg}^{-1}$ 이다. 강수의  $^{239+240}\text{Pu}$  함량은 춘계에는 황사 등에 의한 공급율과 하계 우기에는 강수의 세정효과에 의하여 주로 결정이 되는 것으로 사료된다. (2) 습식  $^{239+240}\text{Pu}$  침착율은  $3.5 \sim 1231.4 \mu\text{Bq m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 이며 최소값은 장마기에, 최대값 황사출현기에 출현하였으며 기하평균은  $33.8 \mu\text{Bq m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 이다. (3) 안산의 강수 Pu 핵종의 기원은 주로 중국 대륙 기원의 황사이며 따라서 중국대륙의 건조지대일 것으로 사료된다. 중국대륙의 건조지대는 과거 핵무기 대기 중 시험장소로서 사용이 되었다. 강수의  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 의 방사능비는 주로 춘계에만 관측이 되었고 그 값은  $0.04 \sim 0.31$ 로서 핵무기 시험 근접지(close-in fallout) 기원의 가능성을 배제할 수 없다. 현재의 강수 Pu의 기원, 육상 및 해상의 침착량과 침착 후의 거동 등을 이해하기 위하여서는 장기간 연속적으로 강수시료를 채취하고 방사능비를 정밀 분석하는 등의 심도 깊은 노력이 요구된다.

## 사 사

현장과 실험실 업무에 도움을 주신 한국해양연구소 박선규씨와 편집교정 작업을 해주신 정원욱씨에게 감사드린다. 본 연구는 한국해양연구소에 의하여 수행되었다(PE98737).

## 참 고 문 헌

기상청(1994-96) 기상 월보.  
 기상연구소(1995) (기상연구개발 I) : 한반도 대기질 감시 및 대기오염 예측 모델 개발. 45pp, 109pp, 161 pp.  
 봉종현(1996) 태풍백서. 기상청. 261pp.  
 이상한, 정창수, 김석현, 홍기훈, 이광우(1999) 한반도 중부 지역의 Pu 핵종의 대기침착량과 토양에서의 Pu 현존량. 대기보전학회지(투고).  
 Baskaran, M.S., P. Asbill, T. Santschi, J. Davis, M. Brooks, V. Champ, Makeyev, and V. Khlebovich(1995) Distribution of  $^{239,240}\text{Pu}$  and  $^{238}\text{Pu}$  concentrations in sediments from the Ob and Yenisey Rivers and the Kara Sea. Appl. Radiat. Isot., 46, 1109-1119.  
 Hamilton, T.F., I.K. Millies-Lacro, and G.H. Hong(1996)  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{90}\text{Sr}$ ) and Pu isotopes in the Pacific Ocean:

Sources and Trends, in *Radionuclides in the Oceans Inputs and Inventories*. Edited by P. Gueueniat, P. Germain and H. Metivier. IPSN, 29-58.  
 Hirose, K. and Y. Sugimura(1984) Plutonium in the surface air in Japan. Health Physics, 6, 1281-1285.  
 IAEA(1985) Sediment Kds and concentration factors for radionuclides in the marine environment. International Atomic Energy Agency, Vienna. 71p. Kim, S.H., G.H. Hong, M. Baskaran, K.M. Park, C.S. Chung, and K.H. Kim(1998) Wet removal of atmospheric  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  at the Korean Yellow Sea coast. The Yellow Sea, 4, 58-68.  
 Igarashi, Y., M. Otsuji-Hatori, and K. Hirose(1996) Recent deposition of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  observed in Tsukuba. J. Environ. Radioactivity, 31, 157-169.  
 Johnson, D.R., M. Yanai, and T. Schaack(1987) Global and regional distributions of atmospheric heat sources and sinks during the GWE. In : Monsoon Meteorology, Oxford Monographs on Geology and Geophysics. 7. Chang CP and Krishnamurti TN (eds.). Oxford University Press, pp. 271-297.  
 Johnston, P., G. Williams, P. Bums, and M. Cooper(1993) Plutonium resuspension and airborne dust loadings in the desert environment of Maralinga, South Australia. J. Environ. Radioactivity, 20, 117-131.  
 Joint Report(1997) Investigation of environmental radioactivity in waste dumping areas in the Northwest Pacific Ocean : Results from the second stage Japanese-Korean-Russian joint expedition 1995. Science and Technology Agency, Tokyo. 56pp.  
 Kang, D.J., C.S. Chung, S.H. Kim, K.R. Kim, and G.H. Hong(1997) Distribution of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  in the surface waters of the East Sea (Sea of Japan). Mar. Pollution Bull., 35, 305-312.  
 Kim, C.W. (ed.) (1996) Korean Monsoon Experiment (KORMEX) Science Plan. Korea Monsoon Study Panel and Korea Meteorology Agency. 136pp  
 Kim, S.H., G.H. Hong, M. Baskaran, K.M. Park, C.S. Chang, and K.H. Kim(1998) Wet removal of atmospheric  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  at the Korean Yellow Sea coast. The Yellow Sea, 4, 58-68.  
 Lee, M.H., C.W. Lee, and B.H. Boo(1997) Distribution and Characteristics of  $^{239,240}\text{Pu}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the soil of Korea. J. Environ. Radioactivity 37, 1-16.  
 Miyake, Y., Y. Katsuragi, and Y. Sugimura(1970) A study on plutonium fallout. J. Geophys. Res., 75, 2329-



- 2330.
- Nozaki, Y., M. Yamada, T. Nakanishi, Y. Nagaya, K. Nakamura, K. Shitashima, and H. Tsubota (1998) The distribution of radionuclides and some trace metals in the water columns of the Japan and Bonin trenches ocean at Actz, 21, 469-483.
- Suchanek, T.H., M.C. Lagunas-Sloar, O.G. Raabe, R.C. Helm, F. Gielow, N. Peek, and O. Carvacho (1996) Radionuclides in fishes and mussels from Farallon Islands Nuclear Waste Dump Site, California. Health Phys., 71, 167-178.
- Thein, M., S. Ballestra, A. Yamato, and R. Fukai (1980) Delivery of transuranic elements by rain to the Mediterranean Sea. Geochim. Cosmochim. Acta, 44, 1091-1097.
- Tsunogai, S., T. Suzuki, T. Kurata, and M. Uematsu (1985) Seasonal and areal variation of continental aerosol in the surface air over the western North Pacific region. J. Oceanogra. Soc. Japan, 41, 427-434.
- Turekian, K.K., Y. Nozaki, and L.K. Benninger (1977) Geochemistry of atmospheric radon and radon products. Ann. Rev. Earth Planet. Sci., 5, 227-255.
- Wong, K.M., T.A. Jokela, and V.E. Noshkin (1994) Radiochemical procedures for analysis of Pu, Am, Cs, and Sr in water, soil, sediment and biota samples. Report UCRL-ID-116497. 57pp. Lawrence Livermore National Laboratory, U.S.A.