

Iodine Deposition onto the Chinese Cabbage

Hansoo Lee · Heui-Joo Choi · Hee-Suk Kang · Donghan Yu ·
Dong-Kwon Keum · Kwang-Mook Lim · Hyo-Kook Park ·
Yong Ho Choi and Chang Woo Lee

Korea Atomic Energy Research Institute

요오드의 배추에 대한 침적

이한수 · 최희주 · 강희석 · 유동한 · 금동권 · 임광목 · 박효국 ·
최용호 · 이창우

한국원자력연구소

(2003년 10월 30일 접수, 2004년 7월 14일 채택)

Abstract - The Chinese cabbage, being one of the principal foodstuffs in Asian countries, is tested for iodine exposure. As a radioactive source, Iodine-125 of which the radiological half life is 60 days was used to measure the concentration change. Experiments were carried out four times with different times of exposure. The iodine source was prepared by the chemical reaction of NaI in order to avoid producing relatively large iodine which might be generated in the case of crystal evaporation. The deposition velocity was obtained from the integrated air concentration and surface concentration of the Chinese cabbage. The environmental half life was also calculated.

Key Words : Iodine, Chinese Cabbage, Dry deposition

요약 - 아시아 국가에서 주요한 섭취작물중 하나인 배추에 대하여 요오드 침적실험을 수행하였다. 방사선원으로 반감기가 60일인 ^{125}I 를 사용하여 농도변화를 관찰하였다. 실험은 피폭시기를 다르게 하여 4회에 걸쳐 수행되었다. 요오드는 NaI의 화학반응으로부터 제조되어 사용되었는데 이유는 일반적인 결정을 증발시키는 방법으로는 비교적 큰 요오드 입자가 생기기 때문에 입자 조절이 가능한 화학반응을 사용하였다. 침적속도는 공기중 농도를 시간에 대해 적분한 것과 배추 표면의 표면농도로부터 얻었다. 또한 환경제거반감기도 계산되었다.

중심어 : 요오드, 배추, 건침적

서 론

요오드는 원자력 시설에서 사고가 발생할 경우 방사선 피폭을 검토할 때 고려해야 할 중요한 핵종 중 하나이다[1]. 원자력 시설 사고시 많이 발생하는 방사성 요오드는 ^{131}I 로 약 8일의 비교적 짧은 반감기를 가지고 있어 사고발생 후 시간이 지나면 점차 감소되지만, 사고발생 초기에는 요오드의 갑상선에 미치는 위해도가 매우 커서 반드시 고려해야 한다. 적은 양이 방출되는 ^{129}I 의 경우 그 양은 작지만 반감기가 1.7×10^7 년으로 매우

길어 특히 토양표면에서의 환경평가지 주의를 기울여야 한다.

침적시 요오드의 화학적 형태는 Elemental, Particulate, Organically bound iodine의 세가지가 될 수 있는데[2], Elemental이란 I_2 로서 기체상태이거나 혹은 기체가 낮은 승화온도때문에 고정화된 것을 말하고 Particulate란 요오드가 에어로졸 등 다른 고형체에 흡착되어 있는 형태이며 Organically bound iodine은 유기물로서 주로 Methyl Iodide 형태로 존재한다. 체르노빌 사고시 대기 중에는 유기물 형태의 요오드가 비유기

물 형태의 요오드보다 많이 관찰되었다[3]. 유기물 형태의 요오드는 습도가 높은 분위기에서는 filter 등에 쉽게 흡착하지 않아 멀리까지 이동될 수 있다고 알려져 있으나[4], 기체상의 Elemental Iodine이 유기물 형태인 Methyl Iodide 보다 식물 등에 쉽게 흡착된다고 알려져 있다[5].

요오드의 식물에 대한 침적은 많은 연구가 이루어져 왔는데, 기상의 요오드가 쌀에 침적하는 것[4,6], 인도에서의 일반적 작물[7], 시금치[8,9], 유럽 잔디, 클로버[2]등이 있으나 배추와 같은 엽채류에 관련된 실험결과는 아직 없는 실정이다. 배추는 김치를 만드는 주재료로서 특히 야외에서 주로 경작되고 있으며, 원자력 시설의 사고시 대기에 많이 노출되는 작물이다. 따라서 본 연구에서는 요오드가 배추에 침적될 경우에 대한 실험을 수행함으로써 침적속도 및 환경저거반감기를 측정하고, 이로부터 요오드에 의한 배추 오염정도를 평가하고 이 측정값을 피폭선량 예측을 위한 코드의 입력변수로 활용하고자한다.

실 험

실험작물 육성

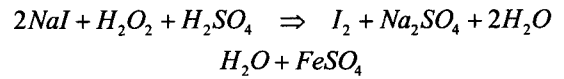
우리나라의 장려품종인 장미배추를 야외에서 플라스틱 포트에서 육성하였다. 포트는 직경이 30cm, 높이가 25cm였다. 포트에 재배토를 넣은 다음 수돗물로 관개하였다. 재배토의 특성은 표 1에 나타내었다.

배추는 2002년 8월 23일에 종자를 직파하였다. 포트당 4~6립씩 약 3cm 깊이로 파종하고 복토한 다음 출아 후 생육 초기에 슈아 포트당 1개체를 육성하였다. 시비는 파종 2일 전에 포트당 복합비료(N:P:K=21%, 17%, 17%) 7.5g, 석회 6g, 퇴비 20g을 표층토에 뿌리고 혼합하였다. 이후 2~3회에 걸쳐 적당량의 복합비료를 추가로 공급하였다. 병충해 방제를 위해 수회에 걸쳐 살균제와 살충제를 살포하였다.

요오드 발생

원자력 사고시 주로 발생하는 요오드는 ¹³¹I로서 반감기가 약 8일이므로 이를 직접 실험에 적용하기에는 적절하지 않다. 따라서 본 실험에서는 반감기 60일의 ¹²⁵I를 사용하여 실험하였다.

요오드 기체는 고체상에서 가열하여 얻을 수 있으나 이 경우 발생하는 요오드 기체가 주위 대기의 온도로 말미암아 쉽게 다시 고체로 되돌아가며 이 과정에서 생성되는 고체의 크기가 여러 분산도를 가진다. 특히 크기가 큰 고체로 다시 고형화 될 수 있고 큰 크기의 요오드가 배추 표면에 침적되어 실제 사고시와 다른 물리적 상황을 유발할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 실험용 재배상자 외부에서 요오드를 발생시키고 요오드 발생장치로부터 재배상자내로 진입하는 관에 fritted glass를 연결해 큰 요오드 입자를 걸러내었다. 외부에서 발생하는 요오드는 다음 화학반응을 이용하였다[10].



먼저 삼각플라스크내에 촉매로 사용되는 H₂O 5ml와 FeSO₄ 0.5g을 넣고 원하는 activity를 발생시킬 수 있는 NaI를 넣는다. 사용된 NaI는 약 2ml였다. 이후 플라스크의 옆가지를 통하여 H₂O₂ 0.5ml와 30% H₂SO₄ 1ml의 혼합물을 흘려보내 I₂를 발생시킨다. 발생한 I₂는 다시 플라스크내로 불어넣은 공기에 의해 피폭상자내로 흘러보내 진다. H₂O₂와 H₂SO₄의 혼합물의 유입속도는 약 1cc/min.이었고 피폭상자내로 유입되는 공기의 유량은 2 L/min.였다. 실험은 30분에 걸쳐 진행되었고 실험 도중 피폭상자로부터 배출되는 I₂를 제거하기 위해 NaOH 용액을 배출구에 장치하였다. 실험 후 약 3시간 정도 더 공기를 불어 넣어 glove box내의 잔류 I₂를 제거하였다.

Table 1. 재배상자내 상부 15cm 토양의 물리·화학적 특성.

pH (1:2.5)	O.M (%)	T-N (ppm)	C.E.C (me/100g)	E.C. (me/100g)			Sand (%)	Silt (%)	Clay (%)	Soil type
				Ca	Mg	K				
5.1	1.56	904.7	3.3	1.38	0.36	0.67	73	23	4	Sandy loam

피폭상자내 피폭실험

피폭상자는 크기가 120cm(L)×95cm(W)×154(H)로 투명한 아크릴로 제작하였고 내부에 온·습도 센서를 부착하였다. 또한 피폭상자 내부에 펜 3개를 작동시켜 피폭상자 내부의 공기가 피폭상자 내의 위치와 관계없이 비교적 균일하게 유지되도록 하였다. 피폭상자의 개략도를 그림 1에 나타내었다. 작물체 피폭은 30분 동안 실시하였으며 피폭 중에 분당 0.3ℓ의 내부공기를 5분간씩 활성탄 필터에 통과시켜 피폭 상자내 공기 중 요오드 기체를 채취하였고 매 5분마다 온·습도와 조도를 측정하였다. 피폭상자 출구에는 NaOH 용액을 연결시켜 배기가스에 포함되어 있는 요오드 기체를 전량 흡수되도록 하였다. 피폭일자는 10월 1일, 10월 14일, 10월 29일, 11월 8일이였다.

시료채취 및 방사능 분석

피폭종료 직후 한 포트의 작물체를 채취하고 나머지 한 포트의 작물체는 수확기(11월 15일)에 채취하였다. 작물체 채취는 배추를 제일 곁에 있는 잎 6장을 곁잎으로 분류하고 나머지 잎은 속잎으로 분류한 다음 각각의 곁잎과 속잎을 반씩 두 가지로 재분리 하였다. 분리한 시료중 한 가지는 바로 잘게 절단하여 계측용기에 담아 계측하였으며 다른 한 가지는 온실 내에서 4주 이상 자연 건조 후 잘게 절단한 다음 계측용기에 담아 계측하였다.

작물체 시료의 방사능 분석은 고순도 Ge 검출기를 이용한 γ -spectrometry 법으로 실시하였다. 사용된 hardware와 software는 EG&G ORTEC사 제품이었고 계측시간은 시료에 따라 0.5~2시간 정도였다.

결과 및 고찰

¹²⁵I 침적속도

피폭상자 내의 기온은 대체로 시간경과에 따라 상승하여 피폭 종료시에는 처음보다 1~6℃ 정도 높았다. 상대습도는 평균 60~90% 정도였고 광도는 평균 12~50klux 범위였다. 공기중 평균 ¹²⁵I 농도는 첫번째 피폭의 경우 매우 낮았으나 나머지 피폭에서는 22~44Bq/L 범위로 서로 큰 차이가 없었고 또한 첫번째 보다 높았다. 피폭상자내 공기중 농도는 그림 2와 같이 시간경과에 따라 대체로 점점 증가한 후 상자내로의 요오드 주입이 정지된 후 감소하였다.

¹²⁵I 용액은 30분 동안 일정속도로 계속 공급되었다. 1차의 경우 섞이는 용액의 부피가 매우 작아 I₂기체가 원활히 발생되지 않아 재배상자내의 농도가 낮았으며 2차, 3차, 4차의 경우 용액 내에 solvent 역할을 하는 물을 많이 포함시켜 가스의 발생을 원활히 하도록 하였다. 2차의 경우 너무 높은 농도의 I₂ 가스가 일어났고, particle size가 비교적 큰 입자도 생성되었으므로 2차, 3차의 경우는 기체 주입구 부분에 glass filter를 달아 발생하는 요오드의 입자를 조절하였다. 2차의 경우 주입관에 glass wool을 사용하였고, 3차의 경우 glass filter로 disc diameter 10mm, filter pore size 145- 174 μm(ACE tube 7205-02)를 사용하였고, 4차의 경우 좀 더 작은 70-100 μm(ACE tube 7205-04) pore size를 가진 disc를 사용하였다. 3차와 4차의 경우 재배상자 내의 농도가 큰 차이를 보이지 않는 것으로 보아 재배상자 내에는 70 μm보다 작은 입자들 및 기체가 주입된 것으로 보인다.

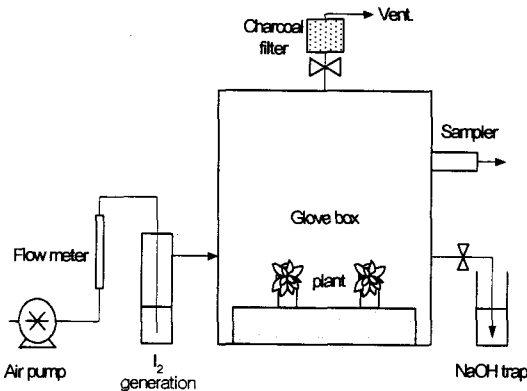


Fig. 1. Schematic view of iodine exposure in glove box.

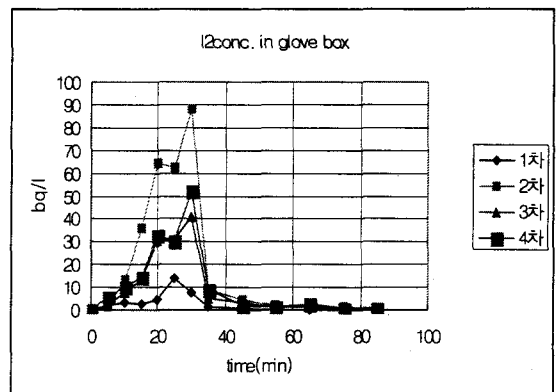


Fig. 2. 배추에 대한 ¹²⁵I 피폭시기별 피폭상자내 공기중 농도변화.

재배상자 내에는 종이 filter도 비치해 놓아 I₂의 종이에 대한 침적속도도 구할 수 있었다. 침적속도는 다음 식에 의하여 구해졌으며 그 결과는 표 2에 요약되어 있다. 실험결과 약간의 변화는 있으나 배추의 경우 침적속도는 약 0.3-1.0 cm/s, 종이의 경우 0.3-0.4 cm/s로 나타났다.

$$v_g = \frac{C_A(x, y, T)}{\int_0^T \chi(x, y, z, t) dt}$$

여기서 C_A(x,y,T)는 배추 표면의 요오드 농도, χ(x,y,z,t)는 공기 중 요오드 농도를 나타낸다.

Table 2. 배추에 대한 ¹²⁵I 피폭시 피폭상자내 침적속도. (단위 : cm/sec)

구 분	1차실험	2차실험	3차실험	4차실험
배 추	0.66	0.36	1.01	0.61
filter paper	0.38	0.30	0.34	0.38

¹²⁵I 잔류율

작물체에 침적한 ¹²⁵I가 수확 건조시까지 작물체에 남아있는 분율, 즉 잔류율(피폭 직후 작물체내 I 침적량에 대한 수확 건조시 작물체내 I 함유량의 비, %)은 표 3과 같다. 잔류율은 피폭시기에 따라 0.3~53.4% 범위로 ¹²⁵I 피폭실험 후 수확시까지 재배기간이 많이 남아 있을수록 낮았다. 속 앞에서는 0.6~6.6% 범위였고 겉 앞에서는 3.1~53.4% 범위를 나타냈으며 잎 전체적으로는 0.3~24.3% 범위였다. 그림 3은 작물체에 대한 ¹²⁵I 피폭 후 수확시까지 남아있는 기간과 잔류율과의 상관관계를 나타낸 것이다. ¹²⁵I 피폭 후 수확시까지 남아있는 기간이 길수록 잔류율은 감소함을 나타내주고 있으며 특히 겉 앞에서 급격한 감소를 보여주고 있다.

위의 실험결과에 입각하여 구한 환경제거반감기는 표 4와 같이 3.4 - 6.8일로 나타났다. 여기서 환경제거반감기란 작물체에 남아있는 I가 weathering 등에 의하여 자연 감소되는 mechanism에 따라 감소할 때의 반감기를 의미한다.

Table 3. 배추에 대한 I-125의 피폭시기별 흡수계수 및 잔류율.

Date of exposure	I-125 in air (Bq/L)	Part of plant	피폭실험후					수확후					잔류율 (%)
			Total Bq-fresh	생체 무게	Total Bq-dry	생체 무게	건조 무게	Total Bq-fresh	생체 무게	Total Bq-dry	생체 무게	건조 무게	
Oct. 1	6.0	Inner leaves	40013	187.6	1446	187.7	13.4	-	-	49	472.8	47.8	0.3
		Outer leaves						-	-	151	171.5	16.8	
		Whole leaves						-	-	200	644.3	64.6	
Oct. 14	44.4	Inner leaves	24750	145.9	6681	154.5	15.9	-	-	281	493.4	44.6	0.6
		Outer leaves	11918	70.6	9258	81.2	8.0	-	-	786	217.9	20.1	3.1
		Whole leaves	36668	216.6	15939	235.7	23.9	-	-	1067	711.3	64.7	1.4
Oct. 29	21.6	Inner leaves	12351	183.6	740	196.2	17.9	634	294.4	364	275.6	25.2	3.9
		Outer leaves	16853	106.5	8277	92.2	8.1	2126	84.2	7236	82.9	7.7	29.8
		Whole leaves	29204	290.1	9017	288.4	26.0	2760	378.6	7600	358.5	32.9	17.8
Nov. 8	25.2	Inner leaves	8137	186.6	2055	219.6	23.1	-	-	1171	578.9	50.9	6.6
		Outer leaves	5716	88.3	3176	82.0	9.4	-	-	5887	192.6	16.2	53.4
		Whole leaves	13853	274.9	5231	301.7	32.5	-	-	7058	771.5	67.1	24.3

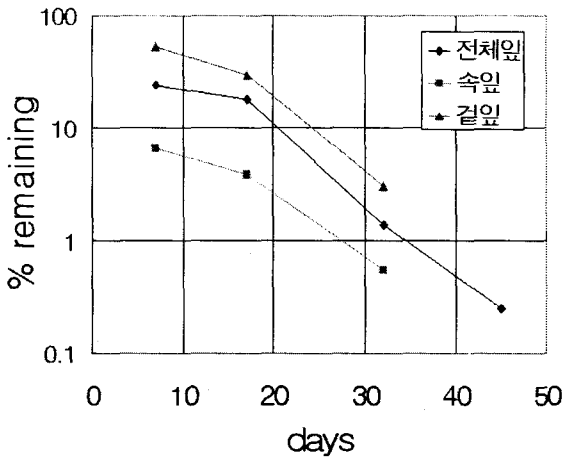


Fig. 3. 배추에 대한 ¹²⁵I 피폭 후 수확시까지 남아있는 시간과 잔류율과의 관계.

Table 4. 배추의 ¹²⁵I 피폭시기별 환경제거반감기.

구 분	1차실험	2차실험	3차실험	4차실험
환경제거반감기 (d)	5.2	5.2	6.8	3.4

결 론

우리나라 채소중 실외에서 경작되고 있어 원자력 시설 사고시 누출핵종에 많은 영향을 받을 수 있는 배추에 대해 요오드의 침적효과를 실험하였다. 재배상자에 넣어 요오드를 피폭시킨 후 침적속도를 측정된 결과 0.4 cm/s - 1.0 cm/s의 값을 얻었으며 환경제거 반감기를 측정된 결과 3일-7일의 결과를 얻었다. 따라서 요오드에 의해 오염된 경우 오염된 정도에 따라 최고 7일이 지난 후에는 초기 조건에서 반으로 감소한다는 것을 알 수 있었다. 본 실험에서 얻은 자료들은 육상생태계의 요오드 평가의 입력자료로 활용될 수 있다.

감사의 글

이 논문은 과학기술부의 원자력중장기사업의 일환으로 수행된 연구결과입니다.

참고문헌

1. H.Nishita, A.Wallance, and E.M.Romney, Radionuclide Uptakes by Plants, NUREG/CR-0336(1978)
2. K.Heinemann and K.J.Vogt, "Measurement of the Deposition of Iodine onto Vegetation and of the Biological Half-life of Iodine on Vegetation", Health Physics, Vol. 39, 463 (1980)
3. H.Noguchi and M.Murada, "Physicochemical speciation of air borne ¹³¹I in Japan from Chernobyl", J. Environ. Radioactivity, Vol.7, 65(1988)
4. Y.Muramatsu, S.Uchida, M.Sumiya, and Y.Ohmomo, "Deposition Velocity of Gaseous Organic Iodine from the Atmosphere to Rice Plants", Health Physics, Vol. 71, 757(1996)
5. Y.Ohmomo and M.Saiki, "Deposition of ¹³¹I on Plant Leaves-1", Radioisotopes, Vol. 1, 15(1971)
6. S.Ucjida, M.Sumiya, Y.Muramatsu, Y.Ohmomo, S.Yamaguchi, H.Obata, and M.Umebayashi, "Deposition Velocity of Gaseous I to Rice Grains," Health Physics, Vol. 55, 779(1988)
7. R.K.Singhal, U.Narayanan, and I.S.Bhat, "Laboratory Evaluation of Interception and Translocation of ¹³¹I in Fenugreek and Okra Plants," Health Physics, Vol. 67, 529(1994)
8. Y.Nakamura and Y.Ohmomo, "Factors Used for the Estimation of Gaseous Radioactive Iodine Intake through Vegetation-I.Uptake of Methyl iodide by Spinach Leaves," Health Physics Vol. 38, 307(1980)
9. Y.Nakamura and Y.Ohmomo, "Factors Used for the Estimation of Gaseous Radioactive Iodine Intake through Vegetation-II.Uptake of Elemental Iodine by Spinach Leaves," Health Physics Vol. 38, 315(1980)
10. F.P.Hungate, J.F.Cline, R.L.Uhler, and A.A.Selders, "Foliar Sorption of ¹³¹I by Plants", Health Physics, Vol. 9, 1159(1963)