

## 계절에 따른 강우중 삼중수소 함량변화

윤윤열<sup>1</sup> ★ · 김경자<sup>2</sup> · 이길용<sup>1</sup> · 고경석<sup>1</sup>

<sup>1</sup>한국지질자원연구원 지구환경연구본부, <sup>2</sup>국토지질연구본부  
(2009. 12. 23. 접수, 2010. 3. 23. 승인)

### Tritium concentration in rain with seasonal variation

Yoon Yeol Yoon<sup>1</sup> ★, Kyeong Ja Kim, Kil Yong Lee<sup>2</sup> and Kyung Seok Ko<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Geologic Environment Division,

<sup>2</sup>Geologic Research division, Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources (KIGAM),  
92 Gwhang-no, Yusung-gu, Daejeon, Korea, 305-350

(Received December 23, 2009; Accepted March 23, 2010)

**요 약:** 지하수 연구를 위한 추적자로 삼중수소를 이용하기 위해서는 강우중 삼중수소 양을 알아야 하므로 본 연구에서는 2007년부터 2009년까지 대전에서 매 월 강우를 채집하여 삼중수소 함량변화를 분석하였다. 분석 결과 강우중의 삼중수소 양은 최소 4.2 TU부터 최대 18.6 TU의 변화를 보였으며 여름과 겨울에 삼중수소의 양이 감소하고 봄과 가을에 그 양이 증가하는 경향을 나타내었다. 강우중의 평균 삼중수소 양을 강우량과 연관한 가중평균을 구한 결과  $7.85 \pm 0.46$  TU를 나타내었다.

**Abstract:** The concentration of the tritium in precipitation from 2007 to 2009 has been analyzed for using tracer of groundwater study. The samples were collected monthly at Daejeon. The tritium concentrations in precipitation were ranged from 4.2 TU to 18.6 TU. The contents were higher at spring and fall season and lower at summer and winter season. The weighted average tritium content in precipitation was  $7.85 \pm 0.46$  TU.

**Key words:** Tritium, precipitation, seasonal variation

### 1. 서 론

삼중수소는 자연 방사성 동위원소로 반감기가 12.43년으로 최대 18 keV의 에너지를 방출하며  $\beta$ -붕괴로  $^3\text{He}$ 를 생성한다. 자연수 중 삼중수소 함량은 TU (Tritium Unit)로 표시하며, 1 TU는  $10^{18}$ 개의  $\text{H}_2\text{O}$  분자당 HTO 1개가 존재하는 것을 의미하며 방사능

단위로 0.118 Bq/L에 해당한다.

자연계에서 우주선에 의해 생성된 중성자와 대기 중 질소와 중수소가 반응하여 생성되는 삼중수소의 2/3는 성층권에서 만들어지고 나머지 1/3은 대기권에서 생성되어 물과 같은 HTO 형태로 산화되어 강수를 통해 지표로 이동한다. 대기중 삼중수소의 함량은 우주선에 의해 대부분 생성되나 핵실험 또는 핵발전소에

★ Corresponding author

Phone : +82-(0)42-868-3654 Fax : +82-(0)42-868-3414

E-mail : yyyoon@kigam.re.kr

의해 일부가 생성된다. 과거 지상 핵실험이 실시 되었을 때는 삼중수소의 주 생성원인이었으나 지금은 우주선에 의해 발생하는 자연준위로 회복되었다. 그러나 핵발전소 부근의 경우 발전소의 영향으로 약간 높은 함량을 나타낸다.<sup>1</sup> 지표에서 관측되는 삼중수소 양은 성층권과 대류권을 통해 이동하는 양이 달라지므로 위도 효과가 나타나 북반구에서는 10~20 TU정도이며, 남반구에서는 10 TU 이하를 나타낸다.

삼중수소는 자연 중에 존재하는 천연 동위원소로 물을 구성하는 원소로 존재하여 100년 미만의 물의 유동연구 및 연대측정에 가장 이상적인 추적자로 1957년 Begemann과 Libby<sup>2,3</sup>에 의해 지하수 연대측정이 시도된 이후 많은 분야에서 활용하고 있다. 지하수의 연령추정에는 여러 가지 동위원소들이 이용될 수 있으나 강수의 일부분으로 대수층에 유입되는 삼중수소는 계절별, 년도별로 변하며 물 자체로 이동하므로 강수와 지하수에 함유된 삼중수소의 양을 측정함으로써 지하수 순환연구에 있어서 매우 유용한 추적자로 활용하고 있다.<sup>4,6</sup> 또한 환경변화에 대응하기 위해 IAEA 주관하에 전세계의 강우중 삼중수소 변화를 연구한 경우도 있다.<sup>7,8</sup> 그러나 삼중수소는 그 함량이 대부분  $10^{-11}$  mg/kg 미만으로 극히 적어 일반적으로 사용하는 측정장비인 기체비례계수기나 액체섬광계수기로 직접 분석이 어려워 대부분 전해농축법으로 삼중수소를 농축하여 측정을 한다.

지하수 연구를 위한 추적자로 삼중수소를 이용하기 위해서는 강우중의 삼중수소 양을 알아야 하므로 본 연구에서는 2007년부터 2009년까지 대전에서 매월 강우를 채집하여 계절변화에 따른 강우중의 삼중수소 변화를 관찰하였다.

## 2. 실험

### 2.1. 시료채취

강우 시료는 매월 초부터 말까지 자체 제작한 강우채집기를 사용하여 한국지질자원연구원 건물 옥상에 설치하여 모았다. 강우 채집기간동안 시료 채집기 표면에 파라핀 오일을 부여하여 증발에 의한 손실을 막아 주었다. 또한 한달동안 내린 강우량은 대전지방 기상청의 강우 통계자료를 사용하였다.

### 2.2. 실험장치 및 시약

#### 2.2.1. 실험 장치

삼중수소 측정은 당 연구원에서 확립된 삼중수소

측정기술을 활용하였다.<sup>9</sup> 삼중수소의 베타선은 Quantulus 1220 (Wallc, Perkin Elmer Co., Finland) 극저준위 액체섬광계수기를 사용하였다. 강우 중에 함유된 낮은 삼중수소의 농도를 농축하기 위해 사용한 전해농축장치는 12개의 시료를 동시에 처리할 수 있고 전해분해시 발생하는 열에 의한 시료의 증발을 방지하기 위해 10% ethylene glycol이 첨가된 냉각조에서 4 °C 온도를 유지시키는 냉각장치를 갖추고 있다. 전해농축용기는 1200 mL 용량의 유리관에 고순도 Ni 전극(99.999%, 350 mmL×63 mmW)을 사용하고 DC 전류 공급장치로 이루어져 있다.

#### 2.2.2. 재료 및 시약

실험에 사용한 시료측정용기는 22 mL 용량의 폴리에틸렌 병으로 내부는 테플론으로, 뚜껑은 알루미늄으로 코팅되어 있다. 환경방사능 측정 섬광용액은 용매와 섬광체 및 계면활성제가 혼합된 Perkin Elmer사의 UltimaGold LLT 각테일 용액을 사용하였다. 삼중수소 바탕시료로 사용한 시료는 지하 500 m에서 채수한 오래된 지하수시료로서 C-14 연대측정법을 사용하여 약 2500년정도 되었음을 확인하였다. 전해제로 특급 시약  $\text{Na}_2\text{O}_2$ 를 사용하여 전해농축시 물시료에 1%를 첨가하여 0.26M NaOH 용액이 되도록 하였다.

## 3. 결과 및 고찰

처음 Libby에 의해 지하수 연구에 활용 가능한 자연 동위원소로 삼중수소가 유용함을 발표한 이후 핵실험 이전 대기 중 삼중수소양을 알기 위해 북위 45도 부근 여러 지역에서 여러 과학자들에 의해 강우와 포도주를 분석하여 발표하였다.<sup>10</sup> 이 결과를 보면 과거 북반구에서 대기중 우주선에 의해 생성되는 삼중수소의 양은 10 TU 미만이었으며, 대기중 핵실험이 실시된 이후 그 양이 점점 증가하였음을 알 수 있다.

국제원자력기구(IAEA)/세계기상기구에서는 수문학 및 기후학의 목적으로 1961년 이후부터 전세계 93개국 550지점에서 강수내 환경동위원소인  $^{18}\text{O}$ , 중수소(D), 삼중수소(H-3)의 변화를 분석해 오고 있으며 그 중 대표적인 북반구와 남반구의 삼중수소 분석 결과를 Fig. 1에 나타내었다.<sup>11</sup> 강우중의 삼중수소 함량은 대기중 핵실험이 금지된 1963년 최고치를 나타낸 후 점점 감소하여 현재는 거의 자연발생 준위까지 떨어졌으며 북반구는 남반구에 비해 삼중수소 함량이 적음을 알 수 있다. 우리나라의 경우 1961년부터 1976

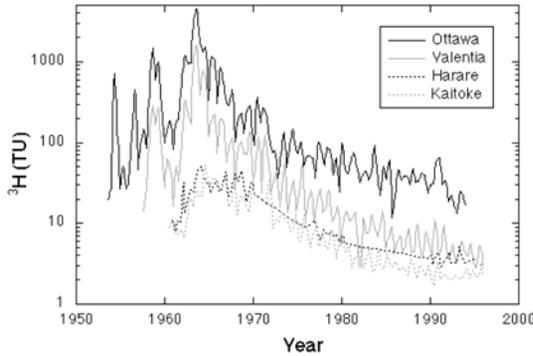


Fig. 1. Tritium concentration in precipitation since 1950 at four IAEA stations (IAEA/WMO, 2006): Ottawa, Canada (northern hemisphere, continental); Valentia, Ireland (northern hemisphere, marine); Harare, Zimbabwe (southern hemisphere, continental); Kaitoke, New Zealand (southern hemisphere, marine).<sup>9</sup>

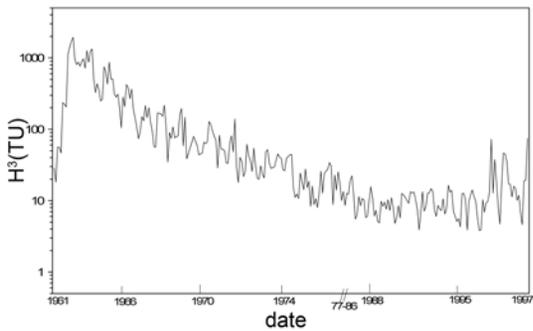


Fig. 2. Monthly changes in the tritium concentration in precipitation collected at Pohang and Daejeon in Korea (1977-1986 not monitored)

년까지 IAEA와 협력하여 포항지역(위도 48.25N, 경도 16.37E)에서 시료를 채취하여 분석한 이후 중단되고 있다. 1987년부터 1997년까지 한국원자력연구소에서 분석하였으며 그 결과는 Fig. 2와 같다.<sup>12</sup> 우리나라의 삼중수소 함량 변화는 IAEA에서 주관한 북반구 삼중수소 변화와 같이 1963년 최고치를 나타낸 후 점점 감소하는 결과를 나타내고 있었다.

성층권에서 자연 방사능에 의해 생성되는 삼중수소 양은 거의 일정하지만 봄철 성층권과 대기권의 권계면의 균열이 발생하면 성층권의 삼중수소가 대기권으로 유입됨으로 삼중수소 농도는 계절과 위도에 따라 함량 차이를 나타낸다.<sup>13,14</sup> 또한 IAEA 관측 결과에서 알 수 있듯이 해안지역의 경우 내륙보다 삼중수소의 양이 적게 나타나는데 이것은 바다에서 생성된 수증기가 증발하여 대기중의 수증기와 섞임으로 희석되는 효과 때문이다.

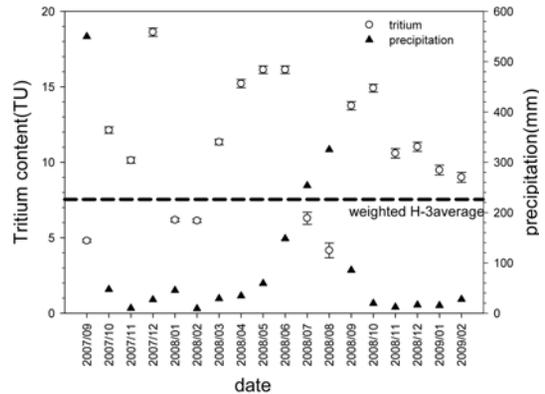


Fig. 3. Tritium content variation in precipitation in Daejeon.

대기 중의 삼중수소 함량변화를 확인하기 위하여 2007년 9월부터 2009년 2월까지 대전 지역 강우 중에 함유된 삼중수소를 분석하였다. 시료는 매일 초부터 말까지 자체 제작한 강우채집기를 사용하였으며 매일 삼중수소를 분석한 결과는 Fig. 3과 같다. 결과에서 알 수 있듯이 2007년 9월과 2008년 7, 8월 강수량이 많은 시기의 삼중수소의 함량이 낮게 나타났다. 이것은 대기 중에 생성된 삼중수소가 여름철 해양에서 생성된 수증기로 인해 발생한 강우로 희석되어진 효과를 나타낸다. 또한 1, 2월경 낮은 삼중수소 값을 나타내다가 3월 이후 그 양이 증가하는데 이것은 Gat등<sup>13</sup>이 설명한 북반구에서 봄철 성층권과 대기권의 권계면 균열로 인해 성층권의 삼중수소가 대기권으로 유입되어 양이 증가하는 설명과 잘 일치하고 있다. 또한 우주선에 의해 생성되는 Be-7을 동시 분석한 결과<sup>15</sup> 한 달의 시간차를 두고 H-3와 Be-7의 함량 변화가 거의 일치하였다. 삼중수소와 Be-7의 변화차이는 삼중수소의 경우 대기중의 산소와 반응하여 물분자를 형성한 뒤 천천히 지상으로 떨어지지만 Be-7의 경우 입자상태로 바로 지상으로 떨어지기 때문으로 여겨진다. 이상의 결과로 대전 지역 강우중 삼중수소 함량변화는 자연방사선에 의해 주기적으로 변화된 양상으로 설명이 된다.

2년간 대전 지역에서 관측된 강우중 삼중수소의 양은 2008년 8월 4.2 TU로 최저값을 2007년 12월 18.6 TU로 최대값을 나타내었다. 또한 매일 측정된 삼중수소 결과에서 겨울과 강수량이 많은 여름철에 낮은 삼중수소 함량을 나타내고 3월 이후 봄철에 높은 값을 나타내었다. 2년간 수집된 평균 삼중수소값은  $7.85 \pm 0.46$  TU로 이 값은 강수량 변화에 따른 효과를 보정하기 위해 삼중수소와 강수량의 가중평균값으로 구하였다.

#### 4. 결 론

강우중의 삼중수소양을 2007년부터 2009년까지 분석한 결과 최소 4.2 TU부터 최대 18.6 TU의 변화를 보였으며 여름과 겨울에 삼중수소의 양이 감소하고 봄과 가을에 그 양이 증가하는 경향을 나타내었다. 강우중의 삼중수소 양을 강우량과 연관한 가중평균을 구한 결과  $7.85 \pm 0.46$  TU를 나타내었다.

#### 감사의 글

본 연구는 한국지질자원연구원 기본사업인 ‘지구 환경변화 대응 지하수 확보 통합솔루션 개발(09-3414)’ 과제의 일환으로 수행되었습니다.

#### 참고문헌

1. C. K. Kim, B. H. Rho and K. J. Lee, *J. Environment Radioactivity*, **41/2**, 217-231(1998).
2. W. F. Libby, The potential usefulness of natural tritium. *Proc. Nat. Acad. Sci.*, **39**, 245-247(1953).
3. F. Begemann 1961. Natural tritium. In: Summer Course on Nuclear Geology. Varenna 1960. Comitato bhzionale per L'Energia Nucleate, Pisa, pp.109-129.
4. J. C. Vogel, L. Thilo and M. Van Dijken, *J. Hydrol.*, **23**, 131-140(1974).
5. I. K. Bronic, N. Horvaticic, J. Baresic, B. Obelic, P. Vreca, S. Lojen and D. Vidic, *RMZ-Materials and Geoenvironment*, **50**(1), 173-176(2003).
6. A. Onugba and H. O. Aboh, *Science World J.*, **4**(2), 23-28(2009).
7. H. Morishima, H. Kawai, T. Koga and T. Niwa, *J. Radiat. Res.*, **26**, 283-312(1985).
8. K. Rozanski, R. Gonfiantini and L. Araguas-Araguas, *J. Physics G*, **17**, S523-S536(1991).
9. 윤윤열, 조수영, 이길용, 김용제, 한국분석과학회지, **20**(5), 419-423(2007).
10. <http://www.science.uottawa.ca/~eih/ch7/7tritium.htm>
11. [http://www.novaquatis.eawag.ch/organisation/abteilungen/wut/schwerpunkte/umweltisotope/methoden/tritium\\_EN](http://www.novaquatis.eawag.ch/organisation/abteilungen/wut/schwerpunkte/umweltisotope/methoden/tritium_EN)
12. 고용권, 배대석, 김천수, 김건영, 한국지하수환경학회지, **6**(3), 126-132(1999).
13. J. R. Gat and Y. Tzur, "Modification of the isotopic composition of rainwater by processes which occur before groundwater recharge". Isotope Hydrology, Proc. Symp. Vienna 1966, IAEA, Vienna, (1967) pp. 49-60.
14. M. Sasaki, H. Kimura, H. Kudou and T. Kudou, *J. Radioanal Nucl. Chem.*, **243**(2), 299-303(2000).
15. K. J. Kim, Y. Y. Yoon, I. Y. Park and H. J. Woo, 2008. Beryllium-7 and Tritium Variations of Rain Water in Korea. 2008 Joint Annual Meeting, Geological Society of America, Huston, Texas, USA 2008.