

DAEHAN HWAHAK HWOEJEE
(Journal of the Korean Chemical Society)
Vol. 13, Number 2, 1969
Printed in Republic of Korea

한국식품 중의 방사능 함량(제 4 보)

한국 우유의 스트론튬-90 함량

원자력연구소 보건물리학 연구실
양 경린

(1969. 3. 4. 접수)

Fallout Radioactivity in Korean Foodstuffs (Part 4)

Strontium-90 in Liquid Whole Milk Produced in Korea

by

Kyung Rin Yang

Health Physics Division, Atomic Energy Research Institute
Seoul.

(Received march 4, 1969)

ABSTRACT

The Concentration of Strontium-90 in liquid whole milk produced in Korea were measured during past four years. The samples of milk were purchased from dairies in Seoul.

Strontium-90 was analysed radiochemically and the amount of stable calcium was also determined. Radioactivity of Yttrium-90 was counted in low background beta counter which has the background of 1.38 cpm.

The concentrations of Strontium-90 in the milk are 25.1 PCi $^{90}\text{Sr}/\text{g. Ca}$ in 1965, 26.8 PCi $^{90}\text{Sr}/\text{g. Ca}$ in 1966, 13.7 PCi $^{90}\text{Sr}/\text{g. Ca}$ in 1967 and 18.2 PCi $^{90}\text{Sr}/\text{g. Ca}$ in 1968 in annual average. The concentrations of Strontium-90 in the milk of 1967 and of 1968 were decreased approximately compared with the values of 1965 and 1966.

From the results we can see that Strontium-90 concentrations in the milk vary roughly proportionally with the specific activity of fallout. Considering on the safety problems, the Strontium-90 levels in the milk produced in Korea were far below the maximum permissible level recommended by ICRP.

서언

우리의 서식권은 여러 가지 성질의 환경 방사능을 보유하고 있어 이들로부터의 방사선에 의하여 항상 피폭되고 있다. 우주선 및 자연 방사성 핵종으로부터의 방사선 그리고 핵실험 및 원자력의 개발 이용으로 인하여 우리의 서식권에 도입된 인공 방사성 핵종으로부터의 방사선이 그것이다. 이들 중 인공 방사성 핵종의 대

부분은 핵폭발 실험에 의하여 생성된 방사선 낙진에 의한 것이다. 이를 방사성 핵종으로부터 방사선을 실지로 받게 되는 것은 주로 이들 방사성 핵종을 음식물과 함께 체내에 섭취하기 때문이다. 방사성 낙진 중에서 우리의 건강 장해면에서 중요시 되고 있는 핵종은 Fresh Fallout인 경우에는 Iodine-131, Barium-140, Strontium-89, Strontium-90 및 Cesium-137 등이며 시일이 경과함에 따라 반감기가 짧은 것은 빠르게 소멸되

며 오랜 시일에 걸쳐 문제가 되고 있는 핵종은 Strontium-90과 Cesium-137이다. 널리 알려져 있는 바와 같이 Strontium-90은 음식물과 같이 인체에 섭취되면 Calcium과 화학적으로 같은 행동을 취하여 뼈에 부착하며 상당히 긴 기간을 체내에 머무르면서 장해를 주게 된다. 따라서 우리가 매일 섭취하고 있는 음식물의 방사성 핵종의 함량은 전강 장해면에서 볼 때 매우 중요한 것이다. 이러한 관점에서 과거 수년간 우리가 섭취하고 있는 음식물에 대한 방사성 핵종의 함량을 측정하였다. 이 보문에서는 우유에 들어 있는 Strontium-90의 함량에 대하여 보고한다.

우유는 매일 새로운 시료를 같은 지역에서 손쉽게 얻을 수 있으며 사료의 환경 방사능으로 인한 오염이 곧 반영되는 관계로 월별 또는 연간 변화를 파악할 수 있어 세계적으로 자기 나라의 측정치를 확보하고 있는 실정이다.

실험

(1) 시료의 채취 및 처리

우유 시료는 1965년과 1966년 2년간은 전국대학교 목장에서 매일 한병(165ml)씩 구입하여 일요일을 제외한 6일분을 합하여 1회의 분석 시료로 하였으며 1967년과 1968년 2년간은 삼육대학 목장에서 10일 간격으로 3L씩 구입하여 1회의 분석 시료로 하였다.

(Table 1)

우유 시료는 중발 전고 시킨 후에 Stainless Steel 용기 에 옮겨 450°C로 온도를 조절한 전기로에서 회화한 후 화학 분석을 하였다.

(2) Strontium-90의 분리 및 정제¹⁾

회화된 시료 10g를 취하여 Strontium Carrier 50mg를 가하고 dil Nitric Acid에 녹여 끓인 후 여과하여 불용물, 주로 Free Carbon을 제거한다. 여액에 Syrupy Phosphoric Acid를 가하고 Carbonate Free Ammonia로서 Strontium, Calcium, Radium 등의 Alkaline Earth Elements를 Phosphate로서 침전시킨다. 침전을 Fuming Nitric Acid에 녹여 Strontium을 Nitrate로 침전시켜서 Calcium과 분리한다. Fuming Nitric Acid에 의한 Strontium과 Calcium의 분리과정을 2~3회 되풀이 하여 Calcium을 완전히 분리 제거 한다. Strontium을 Carbonate로 침전시킨 후 Barium Carrier를 가하고 Radium, Lead, Barium은 Acetate Buffer인 pH5에서 Chromate로서 제거하고 Yttrium, Zirconium과 Rare Earth Elements는 Iron Carrier를 가하여 Hydroxide로 침전, 제거한다. 이와 같이 하여 Strontium을 분리, 정제한 후에 Yttrium Carrier 10mg를 가한 후 약 2주간

방치하여 Yttrium-90과 Strontium-90의 방사 평형이 성립한 후에 Yttrium-90을 Carbonate Free Ammonia로서 Hydroxide로 침전시켜 Strontium과 분리하고 pH1.5에서 yttrium을 oxalate로 침전시켜서 방사능을 계측한다.

Carrier로 가한 Strontium은 Carbonate로 침전시켜 중량법에 의하여 회수율을 구하고 Yttrium Oxalate도 계측전에 평량하여 Yttrium 회수율을 구한다.

(3) 방사능 측정 및 방사능 계산

Yttrium-90의 방사능 측정은 Low Background Beta Counter(Low Beta II, Beckman)를 사용하였다. Yttrium-90에 대한 계측 효율은 43.4%이고 Background counts는 1.38 cpm이다. 이 계측기의 자연 방사능은 비 planchet 만으로는 0.63cpm이나 시료의 처리 과정에서 사용한 여러 시약에 미량 들어 있는 자연 또는 인공방사성 핵종으로 인한 방사능으로 인하여 Yttrium-90을 Yttrium Oxalate로 계측할 때에는 1.38cpm이란 높은 값을 나타냈다. 따라서 Low Background Beta Counter의 자연 방사능 측정은 Carrier 만 가지고 시료 처리와 꼭 같은 처리 과정을 거친 Blank Sample을 가지고 측정하여야 한다. 방사능의 계측 시간은 시료의 방사능의 세기와 채택한 오차의 범위에 따라 결정되지만 주로 5,000 counts preset count로서 측정하였다. 계측 오차는 Low counting Rate에 있어서의 95% Error를 취한 것이다. 즉 다음 식에 의하여 계산한다.

$$E^{95} = 1.96 \sqrt{Ns/ts + Nb/tb}$$

Where: Ns; The counting rate of the sample including the Background in counts per minute.

ts; Number of minutes the sample was counted.

Nb; The counting rate of the Background in counts per minute.

tb; Number of minutes the Background was counted.

Strontium-90의 방사능은 다음 식에 의하여 계산하였다.

$$PCi^{90}Sr = \frac{100C}{Y_1} \times \frac{100}{Y_2} \times \frac{100}{E} \times \frac{1}{2.22}$$

Where: C; Corrected counting rate (cpm) at zero time.

Y₁, Y₂; Respective Sr and Y Yield (%)

E; % counter efficiency for ⁹⁰Y.

(4) Calcium의 정량

Strontium-90의 방사능을 Strontium-unit인 PCi⁹⁰ Sr /g-Ca로 나타내기 위하여 Sample Ash에 험유된 Calcium을 Potassium permanganate titration Method에 의

하여 정량하였다. Sample Ash 를 20~40mg 의 Calcium 을 함유하도록 취하여 dilute Hydrochloric Acid 에 녹인 후 8% Oxalic Acid 를 가하고 Bromocresol green 을 지시약으로 하여 dilute Ammonia Water 를 가하여 pH 4에서 Calcium 을 Oxalate 로 침전시켰다. 침전을 완결 시킨 후 상등액을 버리고 침전을 물로 세척한 후에 가열하면서 dilute Sulfuric Acid 에 녹여 유리된 Oxalic acid 를 1/10N Potassium Permanganate Solution 으로 쟁정하였다. Calcium 的 함량은 다음 식에 의하여 계산하였다.

$$\text{Ca in \%} = \frac{100 \cdot V \cdot F \cdot 2.0035}{W_a}$$

where: W_a ; Weight of ash in mg

V ; KMnO₄ Consumption in ml

F ; Factor of KMnO₄ Solution

결과 및 검토

우리 나라는 지역적으로 성충권 및 대류권 방사성 낙진에 의한 오염이 아주 높은 지역에 속해 있으며²⁾ 1961년 말에서 1962년 초에 걸쳐 소련에서 실시한 일련의 대형 핵폭발 실험 및 1964년에서 1966년에 걸친 중공의 핵폭발 실험에 의한 대류권 낙진의 영향을 크게 받은 지역에 속해 있으므로 우리 나라 우유의 Strontium-90의 함량은 높은 값을 나타내고 있다. 서울 근교 목장에서 1965년부터 1968년 사이에 생산 공급된 우유의 Strontium-90 함량은 Table 1 ($\text{PCi}^{90}\text{Sr}/\text{g-ca}$)과 Fig. 1 ($\text{PCi}^{90}\text{Sr}/\text{l-milk}$)과 같다. 이를 측정 결과를 살펴 보면 1965년에 28.6 $\text{PCi}^{90}\text{Sr}/\text{l-milk}$, 1966년에 28.1 $\text{PCi}^{90}\text{Sr}/\text{l-milk}$, 1967년에 16.6 $\text{PCi}^{90}\text{Sr}/\text{l-milk}$, 1968년이 20.0 $\text{PCi}^{90}\text{Sr}/\text{l-milk}$ 이었다. 1967년과 1968년의 평균치는 18.3 $\text{PCi}^{90}\text{Sr}/\text{l-milk}$ 로서 1965년과 1966년의 평균치 28.3 $\text{PCi}^{90}\text{Sr}/\text{l-milk}$ 와 비교하여 볼 때 약 35% 의 감소를 나타내고 있어 1966년을 고비로 현저한 감소를 보여 주고 있다. 우유의 Strontium-90 함량의 월별 및 년간 변화를 같은 기간 중의 서울 지역의 방사성 낙진의 변화 상태³⁾와 비교 검토하면 이 기간 중에 중공의 5 차 핵폭발 실험으로 인하여 1966년 종반기와 1967년 초반기의 방사성 낙진이 급격히 증가하였든 시기의 일부 우유 시료가 결여되어 있어 유감이지만 이 시기 전후의 증감 상태 등으로 미루어 보아 대략 같은 경향을 보여 주고 있다(Fig. 2). 특히 1967년 후반기의 낮은 좋은 일치를 보여 주고 있다. 이는 우유의 Strontium-90에 의한 오염이 그 지역의 방사성 낙진과 밀접한 관계가 있음을 말하여 주고 있는 것이다. 즉 방사성 낙진으로 인한 사료의 직접적인 오염이 지배적임을 알 수가 있다.⁴⁾ 성충권 및 대류권의 방사성

낙진의 강하율은 북반구의 북위 30°~50° 사이가 가장 심하며 같은 위도에서는 거의 같은 강하율을 나타내고 있음이 세계 각처에서 측정한 Soil 중의 Strontium-90 함량 결과를 정리 분석 하므로써 밝혀졌다.⁵⁾ 그러나 이번에 얻어진 우리 나라 서울 우유의 Strontium-90의 함량을 거의 같은 위도 상에 있는 미국 New York 시의 우유의 Strontium-90 함량과 비교하여 보면⁵⁾ 그 증감은 대략 같은 경향을 보여 주고 있었다(Fig. 3).

그러나 함량 자체는 큰 차이가 있다. 즉 우리나라 우유가 거의 2.5배나 높았다. 이는 우리나라가 소련 및 중공의 핵폭발 실험 실시 지역에 가깝게 위치하고 있어 대류권 낙진에 의한 방사성 오염을 같은 위도상의 다른 지역보다 많이 받고 있는 것을 말하여 주는 것이다. 같은 위도상에서는 성충권 낙진에 의한 오염의 영향은 같은 경향을 나타내지만 대류권 낙진의 경우는 같은 위도상이라도 지역적인 차가 있다는 것을 알 수 있다. Strontium-90 함량을 계절적으로 살펴 보면 계절에 따른 차이는 찾아 볼 수 없었으나 강우기인 6,7월에 약간 높은 경향을 보여 주고 있다. 방사성 낙진의 강하율이 크게 증가하는 소위 Spring peak의 현상은 찾아 볼 수 없었다. 이는 방사성 낙진이 Mixed Fission products이며 Strontium-90은 그 중의 한 핵종이라는 차이에 의한 것이 아닌가 생각된다.

우리 나라에서는 구미인들과 같이 성인의 Calcium 공급의 대부분을 우유에 의존하고 있지 않으나 근년 우유 소비량이 급증하고 있으며 인공 영양아는 폴리를 형성하는 Calcium 을 모두 우유로 부터 받고 있는 실정이므로 우유의 Strontium-90 함량은 방사능에 의한 건강 장해면에서 매우 중요한 문제라 하겠다. 1 $\text{PCi}^{90}\text{Sr}/\text{g-ca}$ 이 뼈속에 들어 있다면 뼈에게 년간 2.5m rem/year, 풀수에 1m rem/year 의 Dose rate로서 방사선 피폭을 준다는 것이 밝혀져 있다.²⁾ 얻어진 결과를 전장 장해면에서 검토하여 보면 국제 방사선 방호 위원회에서 권고한 Strontium-90의 뼈에 대한 최대 허용 부하량은 2.5Ci 이다. 따라서 일반 대중에 대한 최대 허용 선량은 이의 1/30인 $6.7 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}$ 가 된다.⁶⁾ 체중 60kg 인사람의 Calcium 함량은 개략적으로 체중의 1.5% 즉 900g 이 된다. 따라서 Gram Calcium 당 허용량은 74 $\text{PCi}^{90}\text{Sr}/\text{g-Ca}$ 이 된다. 여기서 우리의 음식물에 대한 허용량을 생각하여 보면 Strontium-90에 대한 Calcium의 선택 보류 계수⁷⁾는 그 평균치가 4로 알려져 채택되고 있다. 이 값을 적용시키면 음식물 중의 Strontium-90의 최대 허용 선량은 296 $\text{PCi}^{90}\text{Sr}/\text{g-Ca}$ 이 된다. 과거 4년간 Strontium-90의 최대 함량은 1966년 8월의 34.9 $\text{PCi}^{90}\text{Sr}/\text{g-Ca}$ 이 있으므로 상기 최대 허용량과 우유에 대하여 영국에서 채택하고 있는 Drived Maximum Level

TABLE 1. STRONIUM-90 IN LIQUID WHOLE MILK

Year	Month	Activity	Jan			Feb			Mar			Apr			May			Jun		
			Day																	
1965															17-22	48.8±0.1	31-4	22.6±0.1		
															24-28	9.1±0.2	7-12	19.8±0.6		
															14-19	26.5±0.5				
															21-26	27.9±0.9				
Mean																28.9		24.2		
1966	17-22	25.6±0.7	31-5	27.0±0.8	28-5	10.7±0.4	28-2	18.1±0.5	3-7	28.3±0.8	30-4	30.8±0.9								
	24-29	24.9±0.8	7-12	26.0±0.8	7-12	26.0±0.8	6-9	26.9±0.8	9-14	25.3±0.7	7-11	29.2±0.9								
		14-19		14-19	21.9±0.1	11-16	24.7±0.7	17-21	28.1±1.1	13-18	28.7±0.6									
		21-26	19.3±0.7	21-26	21.7±0.7	18-23	29.2±0.7	23-28	36.2±1.0	20-25	24.9±0.8					27-2	24.9±0.7			
Mean			25.3	24.1	20.1		23.7		29.5		27.7									
1967	1-10					24.8±0.7		19.8±0.6		13.1±0.4		11.0±0.5								
	11-20		16.8±1.0					17.1±0.6		17.9±0.6		10.9±0.5								
	21-30		22.3±1.3		19.2±0.4			16.1±0.6		10.1±0.5		5.8±0.3								
	Mean			19.6	22.0		17.7		13.7		9.2									
1968	1-10					25.0±0.6				17.3±0.6		24.6±0.8								
	11-20					29.2±1.3		13.8±0.3		10.1±0.5		39.3±1.1								
	21-30					14.8±0.3		9.8±0.4												
	Mean				23.0		11.8		13.7		31.9									

인 800 $\text{PCi}^{90}\text{Sr/g-Ca}^{40}$ 과 비교하여 볼 때 우유를 섭취하므로써 생기는 방사능에 의한 건강 장해는 현재 상태

에서는 문제가 되지 않는다는 것을 알 수가 있으나 계속적인 감시는 실시되어야 할 것으로 생각된다.

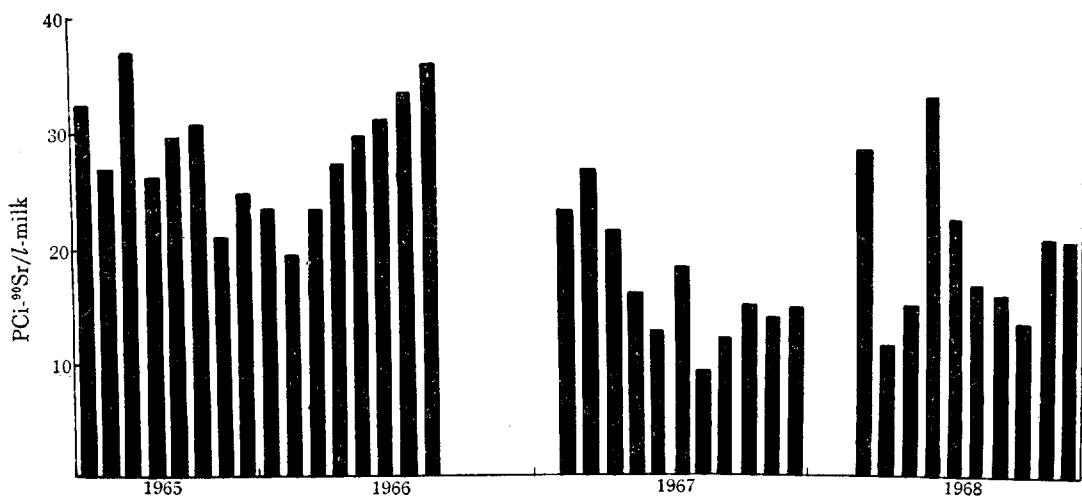


Fig. 1. Strontium-90 in Milk

Unit; $\text{PCi}^{90}\text{Sr}/\text{g Ca}$

Jul		Aug		Sep		Oct		Nov		Dec	
28-3	43.2 ± 0.7	16-21	23.2 ± 0.7	30-4	17.1 ± 0.9	27-2	28.6 ± 0.8	1-6	16.4 ± 0.5	22-4	24.3 ± 0.7
5-10	29.8 ± 0.7	23-28	18.6 ± 0.6	6-11	28.4 ± 0.7	4-8	21.1 ± 0.8	8-20	27.4 ± 0.8	6-11	22.8 ± 0.7
12-17	20.5 ± 0.3			13-18	22.8 ± 0.7						
				20-25	27.8 ± 0.8						
	32.5		20.9		24.0		24.8		21.9		23.6
4-19	28.9 ± 0.8	1-13	33.9 ± 0.8								
11-16	30.1 ± 0.9	16-20	36.0 ± 1.0								
18-23	30.3 ± 1.0										
25-30	27.9 ± 0.8										
	29.3		34.9								
10.0 ± 0.5			6.6 ± 0.3		11.7 ± 0.5			8.7 ± 0.5		8.6 ± 0.1	
24.0 ± 0.4		6.2 ± 0.3	11.8 ± 0.5		10.8 ± 0.5				8.1 ± 0.3		
12.2 ± 0.5		8.8 ± 0.5	11.7 ± 0.5		15.1 ± 0.7			13.7 ± 0.4		19.2 ± 0.5	
15.4		7.5	10.0			12.5		11.2		11.9	
43.5 ± 1.1		14.1 ± 0.6	19.1 ± 0.9		9.4 ± 1.2			18.1 ± 0.9		17.9 ± 0.7	
7.4 ± 0.6		9.5 ± 0.9	8.8 ± 0.6		14.8 ± 1.3			23.2 ± 1.0			
14.2 ± 0.6		24.6 ± 1.8	16.4 ± 2.1		11.1 ± 1.3			16.4 ± 0.7			
21.7		16.0	14.8			11.8		19.2		17.9	

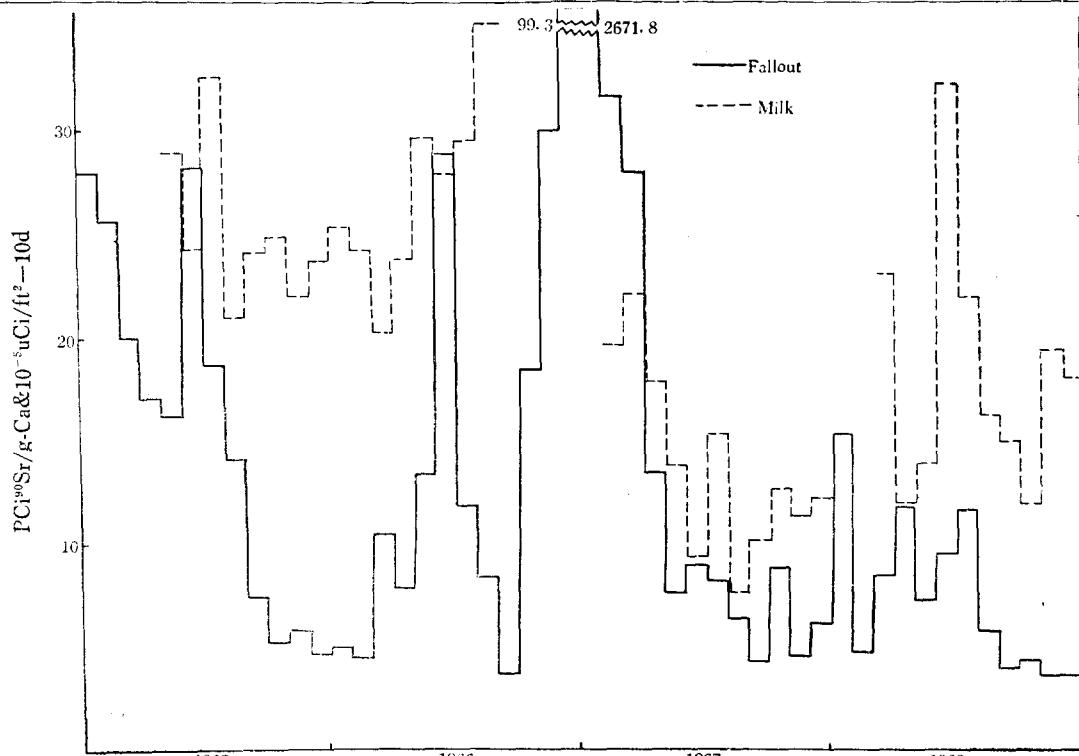


Fig. 2. Strontium-90 in Milk and Fallout Activity

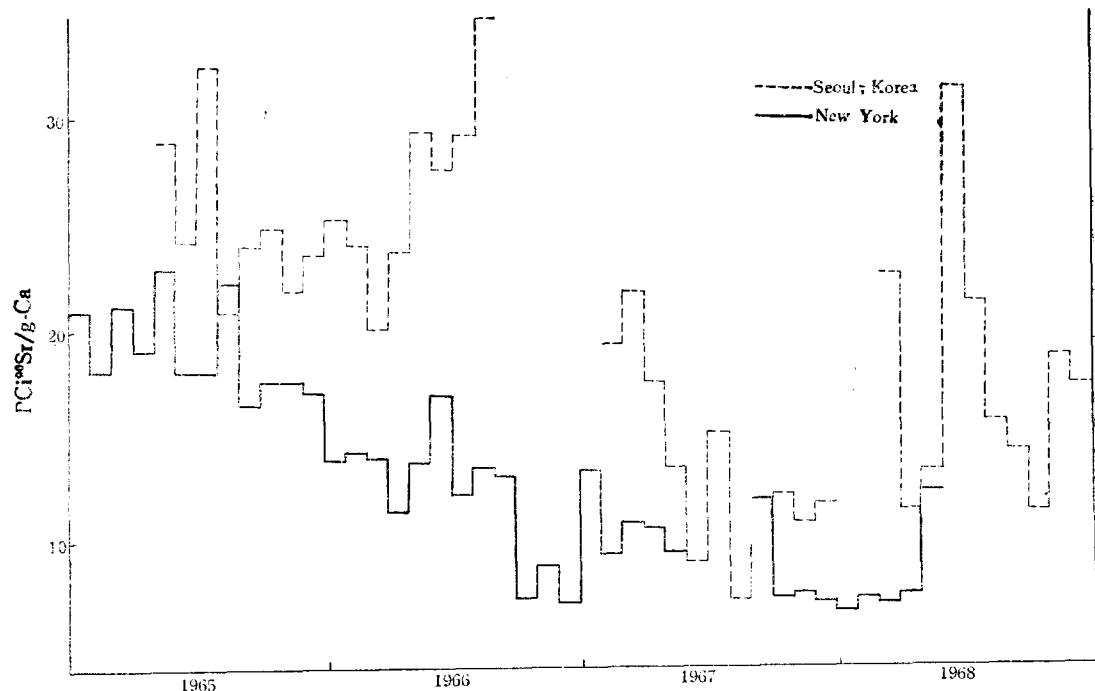


Fig. 3. Strontium-90 in Milk

REFERENCE

- 1) HASL AEC, NYO-4700, p. E-Sr-Ol-Ol. (1967).
- 2) United Nations, *Report on the united nations scientific committee on the effects of atomic radiation.*, New York., p. 98. (1958).
- 3) Jun, J. S., *Personnal Communication.* (1968).
- 4) Kulp, J. L., Schulert, A. R., Hodges, E., J., Anderson, E. C., and Langham, W. H., *Science* 133, p. 1768. (1961).
- 5) HASL AEC, HASL-204 APP., N. Y. 10014, p. D-1. (1969).
- 6) I.C.R.P., *Report of committee II on Permissible doses for Internal Radiation.*, Pergamon Press, London. (1959).
- 7) Douyoyiannis, I., and Mimikos, N. *Health Physics* 12, p. 1620. (1966).
- 8) Dunster, H. J., *AHSB(PR)R 78*, Harwell, p. 4 (1967).