환경 중 삼중 수소 검출의 의미와 건강영향 선량(Bq) 및 선량환산(Sv/Bq)

서울대학교 보건대학원
백도명

월성원전 삼중수소의 논란지점들

- 노출선량 (Bq)
- 선량 환산 (Bq/Sv)
- 건강영향 기준(Sv)과 비교

1. 실제 한국에서의 삼중수소 선량측정치

- 대기 중 수증기 및 빗물에서 측정된 삼중수소 선량
- 채정석, 서울대학교 지구환경과학부 박사학위 논문, 2019년 2월
 - “ ^3H 와 ^7Be 를 이용한 대기 수증기 및 입자 추적”
- 한국수력원자력, 보고서 2020년 6월 23일
 - “월성원전 부지내 지하수 삼중수소 관리현황 및 조치계획”
- 소변 중 삼중수소

이학박사 학위논문

**Applications of ^3H and ^7Be as tracers
of atmospheric water vapor and
particles**

^3H 과 ^7Be 을 이용한 대기 수증기 및 입자 추적

2019년 2월

서울대학교 대학원

지구환경과학부

채 정 석

채정석, 서울대학교 박사학위 논문, 2019

전국 측정망과 대기 수증기 중 삼중수소

C4 측정망에서의 1월 수준은 다른 지역보다 높아 북풍이 불어오는 월성원전의 영향으로 판단

채정석, 서울대학교 박사학위 논문, 2019

1960년대부터 대기 수증기 삼중수소 수준

Figure 2.13. Long-term variations of the weighted mean annual tritium concentrations in precipitation in Korea from 1961 to 2016, in comparison with other stations in Asia.

Figure 2.14. Long-term variations of the weighted mean annual tritium concentrations in precipitation in Korea from 1980 to 2016, in comparison with other stations in Asia.

월성 원전 주변지역 대기 수증기 삼중수소

Figure 4.1. Map of the sampling stations around the Wolsong NPP site. The star, open circles, and closed circles represent the Wolsong NPP site and sampling stations for both water vapor and precipitation, and precipitation, respectively.

Table 4.1. Concentrations of tritium in the water vapor around the Wolsong NPP.

Station	Location		Range (Bq/L)	GM ^a (Bq/L)	SD ^a (Bq/L)	Period
	Cardinal direction	Distance (km)				
N2	N	0.9	68 - 2200	431	517	2003.4 - 2008.12
N4	NNE	1.8	37 - 1810	262	358	1998.1 - 2003.3
N5	NNE	2.2	14 - 798	120	142	1998.1 - 2015.12
N7	NNW	8.8	2.2 - 67	12	12	2008.5 - 2015.12
S2	SSW	1.7	18 - 645	75	77	1998.1 - 2015-12

^a Geometric mean (GM), standard deviation (SD).

원성 대기 수증기 삼중수소 시기별 변화

Figure 4.2. Time series of the tritium concentrations (Bq/L) in the water vapor at the sampling stations N2, N4, N7, and S2 during the sampling periods

월성 연간 배출량과 환경 중 삼중수소 수준

Figure 4.10. Plots of the annual geometric mean concentrations in the water vapor during the sampling periods (2001–2015 at N5; 2009–2010 and 2012–2015 at N7; 2002–2015 at S2) against the amounts of tritium released annually from the Wolsong NPP.

Figure 4.11. Plots of the annual geometric mean concentrations in the precipitation during the sampling periods (2001, 2003–2004, 2006 and 2008–2010 at S1; 2001, 2006, 2008–2009, 2012 and 2014–2015 at S4; 2001, 2003, 2006, 2009 and 2015 at S7) against the amounts of tritium released annually from the Wolsong NPP.

4.3.3. Tritium in the precipitation

- The concentrations of tritium in the precipitation were in the range of 0.3–1090 Bq/L with a geometric mean of 19 Bq/L (SD: 116 Bq/L; $n = 2,404$) for all sampling stations (Table 4.2).
- These values are comparable with those in the precipitation (1.7–1554 Bq/L) observed around the Wolsong NPP site from 1993 to 1995 when only the Wolsong Unit 1 operated (Kim et al., 1998).
- However, these tritium levels are approximately two orders of magnitude higher than the background level (1.05 Bq/L) observed at 15 national monitoring stations in Korea (KINS, 2006).
- These levels are also significantly higher than those reported for rain water (0.8–8.9 Bq/L) around nuclear facilities in Japan (Matsuura et al., 1995), precipitation (0.6–5.9 Bq/L) around the nuclear power plant in Hungary (Köllő et al., 2011), and precipitation (2.2–35.4 Bq/L) in the vicinity of the VINS (Miljević et al., 2000).

월성원전 부지 내
지하수 삼중수소 관리현황 및 조치계획

'20. 06. 23

월성원전 삼중수소 선량 감시 자료

□ 지하수 배수계통 감시결과 [단위 : Bq/m³]

호기	시료채취 위치	삼중수소	감마핵종	빗물 중 삼중수소 ('19.1~12)
#1 ('19.8 ~ '20.05)	터빈갤러리 배수 종단지점	$1.61 \times 10^6 \sim 2.40 \times 10^6$	불검출	3.33×10^3 ~ 1.48×10^5
	SFB 집수정	$3.01 \times 10^8 \sim 3.54 \times 10^8$	불검출	
	SFB 하부 지하수	$1.61 \times 10^6 \sim 3.97 \times 10^7$	불검출	
#2 ('19.8 ~ '20.05)	터빈갤러리 배수 종단지점	$1.22 \times 10^6 \sim 1.69 \times 10^6$	불검출	
	SFB 집수정	$1.18 \times 10^8 \sim 3.93 \times 10^8$	불검출	
	SFB 하부 지하수	$2.99 \times 10^6 \sim 2.60 \times 10^7$	불검출	

호기	시료채취 위치	삼중수소	감마핵종	빗물 중 삼중수소 ('19.1~12)
#3 ('19.8 ~ '20.5)	터빈갤러리 배수 종단지점	$1.40 \times 10^5 \sim 3.14 \times 10^6$	불검출	1.33×10^5 ~ 9.23×10^5
	SFB 집수정	$3.38 \times 10^8 \sim 3.53 \times 10^8$	불검출	
	SFB 하부 지하수	$1.60 \times 10^5 \sim 8.61 \times 10^6$	불검출	
#4 ('19.8 ~ '20.5)	터빈갤러리 배수 종단지점	$3.00 \times 10^4 \sim 6.20 \times 10^5$	불검출	
	SFB 집수정	$2.31 \times 10^8 \sim 5.30 \times 10^8$ *	미량검출** (7회)	
	SFB 하부 지하수	유입수 없음		

소변 중 삼중수소

일반인구

- Sweden before ESS(2020) > 2.1 Bq/L
- Turkey(2015) 4.66 Bq/L
- Korea General Public(2013) 2.8 Bq/L
- Finland(2008) 2.5 Bq/L

방사선시설 주변 주민

- Korea Wolsong residents(2015) 17.3 Bq/L
- China Qinshan NPP(2015) 3.53 Bq/L at 2 Km
- Canada Deep Water resident (2001) 15.9 Bq/L

(정리1) 실제 한국에서의 삼중수소 측정결과

- 60년대에는 대기 중 수증기 및 빗물 속 삼중수소의 수준이 높았으나 현재 들어와 그 수준은 전국 측정망 자료에 근거하였을 때 평균 1.05 Bq/L의 수준임
- 한편 월성원전 인근에서 측정되는 대기 중 수증기 및 빗물 속 삼중수소의 수준은 전국 평균의 약 100~1000배에 이르는 수준으로서, 원전에서 방출되는 폐기 방사선량과 대기 중 측정 수준의 연평균이 밀접히 비례하고 있으며, 원전으로부터의 거리와 대기 중 측정 수준이 반비례함을 보여 주고 있음

2. 선량환산

- 선량환산
 - 물리적 에너지로부터 생물학적 건강영향으로 환산하기 위한 지수
- 환경 및 생체 내에서의 거동(kinetics) + 작동(dynamics)
 - 환경에서의 거동 모델과 노출경로
 - 생체 내에서의 거동 모델과 반감기
 - 환경에서의 작동
 - 생체 내에서의 작동

Fig. 3. Tritium dispersion and environmental migration fate in the terrestrial and aquatic system.

Fig. 1. Physicochemical forms of tritium in the environment; HT (tritiated hydrogen), HTO (tritiated water), CH₃T (tritiated methane), T_{org} (gaseous organic tritium), T_{aero} (tritiated aerosols), TFWT (Tissue Free Water Tritium), T_{technogenic} (technogenic tritium), E-OBT (Exchangeable Organically Bound Tritium), NE-OBT (Non Exchangeable Organically Bound Tritium), QR-OBT (Quickly Recycled Organically Bound Tritium), SR-OBT (Slowly Recycled Organically Bound Tritium). Images from courtesy of the Integration and Application Network, University of Maryland Center for Environmental Science (ian.umces.edu/symbols/).

환경 거동 Migration, Uptake, Transformation

- 방출
 - 자연발생, 인공발생
- 거동
 - 대기, 지표수, 지하수, 대양
- 광합성
 - 탄소와 결합, 그 외 질소, 황 등과 결합
- 먹이사슬
 - 생축적 (bioaccumulation)
- 분해 및 방사능 감쇄

생체 축적(bioaccumulation)의 최근 소견

- Jaeschke BC, Bradshaw C. Bioaccumulation of tritiated water in phytoplankton and trophic transfer of organically bound tritium to the blue mussel, Mytilus edulis. J Environ Radioact. 2013 Jan;115:28-33.
- Kim SB, et al. Organically bound tritium (OBT) formation in rainbow trout (Oncorhynchus mykiss): HTO and OBT-spiked food exposure experiments. Appl Radiat Isot. 2013 Feb;72:114-22.
- Duff MC , et al. Assimilation and transport of organic bound tritium in an irrigated pine forest. Environ Sci Process Impacts. 2019 Jun 19;21(6):938-949.
- Choi YH et al. Tritium levels in Chinese cabbage and radish plants acutely exposed to HTO vapor at different growth stages, Journal of Environmental Radioactivity, 2005; 84(1):79-94 -> OBT/TFWT 24~2800

생체 거동 Biokinetics

- 삼중수소 기체 (tritiated gas: HT)
 - 0.01% of inhaled HT converted to HTO in the body
- 중수 TFWT (tissue free water tritium)
 - 10 days
- 유기체
 - Short term OBT (exchangeable organically bound tritium) 40 days
 - Long term OBT (non-exchangeable organically bound tritium) 350 days

생체거동모델 Biokinetic model

Figure 1. The proposed systemic model for tritiated water.

Table 2. Ranges on values of biokinetic parameters and RBE derived by Harrison *et al* (2002), considering ingestion as either tritiated water (HTO) or organically bound tritium (OBT) (ICRP values in brackets).

Parameter	HTO	OBT
Absorption to blood	1 (1)	0.9–0.99 (1)
Fraction incorporated into OBT in body tissues	0.01–0.1 (0.03)	0.15–0.75 (0.5)
Half-time of retention of HTO component in adults, days	5–20 (10)	5–20 (10)
Half-time of retention of OBT component in adults, days	20–200 (40)	20–200 (40)
Relative concentration in foetus:mother	1.2–2 (1.4)	1.2–2 (1.4)
RBE	1–2.5	1–2.5

Fig. 2. Exchange between free (mobile) and bound forms (sequestered) of tritium within the environment; HTO (tritiated water), TFWT (Tissue Free Water Tritium), $T_{\text{technogenic}}$ (technogenic tritium), E-OBT (Exchangeable Organically Bound Tritium), NE-OBT (Non Exchangeable Organically Bound Tritium), QR-OBT (Quickly Recycled Organically Bound Tritium), SE-OBT (Slowly Recycled Organically Bound Tritium). Images from courtesy of the Integration and Application Network, University of Maryland Center for Environmental Science (ian.umces.edu/symbols/).

선량환산계수 dose conversion coefficient

- ICRP
 - WTO: $1.8 * 10^{-11}$ Sv/Bq
 - OBT: $4.2 * 10^{-11}$ Sv/Bq
- OBT in Cardiff Bay fish (flounder)
 - $6.1 * 10^{-11}$ Sv/Bq
- By including long-term component (350 days)
 - $6.3 * 10^{-11}$ Sv/Bq
- Compared to an acute response induced by γ -rays, a persistent inflammatory response exists in HTO-irradiated cells when cultured for 30 days, which might be related to accumulation of tritium in the form of organically bound tritium (OBT) in cellular DNA or lipids.

선량 모델 dosimetric model

Age	Form	5%	50%	95%
Adult	HTO	2.1 ^c	3.9 ^d	6.6
	OBT	3.9	8.7 ^e	20
Foetus	HTO	3.7	7.6 ^f	14
	OBT	6.9	17 ^g	40

- **Table 3.** Probability distributions^a on tritium doses from the ingestion of HTO or OBT by adults and for the foetus after maternal ingestion during pregnancy^b, Sv/Bq × 10e-11 .

a. Distributions on mean values for population groups.

b. Intake during pregnancy at 10 weeks after conception.

c. Read as $2.1 \times 10e-11$ Sv/Bq . Note that the tabulated values should strictly be Gy Bq/Bq*RBE since equivalent and effective doses are calculated using wR values to represent RBE.

d. ICRP values are 1.8; ^e 4.2; ^f 3.6; ^g 7.6.

한국의 선량환산 추정 코드 프로그램

- 1977~1979, US NRC GASPAR model
- 1980~1983, 선량추정 없음
- 1988~1998, GADOS, LIQDOS
- 1998~2009, INDAC(integrated dose assessment code) 1.0
- 2009~ , INDAC 1.1
- 모든 핵종이 고려되지 못함
 - ^{14}C 2011년 모니터 시작 이후 피폭선량 10배 증가하는 것으로 계산됨 (선량의 90% 차지)
- 모든 노출경로가 고려되지 못함
 - 곡물 잎 침적오염 무시(GADOS)
 - Tritium - 농작물, 지하수 등 노출 무시
- 당시 ICRP에서 주어진 기계적 선량환산에 머물고 있음

Exposure pathways		Dose ($\mu\text{Sv/a}$)	Percent (%)	Percent (%) ^a	Dose ($\mu\text{Sv/a}$) ^b
Inhalation & skin- absorption	Evaporation (liquid)	1.16	1.9	No consider	No consider
	Gaseous discharge	7.68	12.5	29	26.08
Ingestion	Terrestrial products	45.29	73.6	71	
	Aquatic products	Much lower	–	No consider	0.042
Water drinking	Underground water	7.37	12	No consider	No consider
Total	61.5	100	100	26.12	

^a The percent of inhalation and ingestion originates from the results given by DCART code developed by the LLNL in the USA. Just as the description in the previous part, the DCART code also gave a HT release having a 1%–10% dose impact compared with HTO. And the exposure of a HT release mainly comes from HTO converted in soil [98].

^b The data originates from individual dose assessment for gaseous and liquid tritium discharged from Wolsong NPP in Korea in the year of 2015 [6].

(정리2) 선량환산에서 고려할 점

- 환경 중 노출경로가 모두 고려되어야 함
 - 특히 음식물 (농작물과 수산물 모두 포함)
- 생체 내 거동이 파악되어야 함
 - 특히 생체내 구성성분과의 결합
- 생체 내 작용이 규명되어야 함
 - 삼중수소에서 발생하는 저준위 베타선의 RBE (relative biologic effectiveness) : 감마선에 비하여 1.5~2배, 엑스선에 비하여 2~5배, 그러나 radiation weighting factor는 그냥 1
 - Dose and dose rate effectiveness factor (DDREF)

3. 선량과 건강영향 기준 비교

- WTO 소송에서 일본산 수입 수산물과 관련하여 한국 정부가 제시한 보호수준
 - 정량적 기준으로서 일반인의 피폭선량이 1 mSv/yr 이하일 것
 - 정성적 기준으로서 합리적으로 가능한 수준에서 가장 낮은 수준일 것 (As Low As Reasonably Achievable, ALARA)
 - 자연적 상황에 있는 일상적인 환경 (ordinary environment) 수준을 넘지 않을 것: 한국의 배경 수준은 1 Bq/L
- 바나나 선량 (banana equivalent dose, BED): 0.1 micro Sievert (uSv)?
 - 환경 및 생체 내 거동, 그리고 선량 모델에서 비교될 수 있는 내용이 아님
 - 바나나 내의 칼륨은 유기물과 결합하는 형태가 아니라 이온화되어 있는 물질
 - 단순화 시킨 비교라 하여도 맞지 않음

음용수(?) 기준

구분	호기수		삼중수소 농도 제한치(Bq/L)	비고(기준선량)
	CANDU	전체		
캐나다	18	18	7,000	0.1 mSv/y
EU	2	126	100	0.1 mSv/y
핀란드	0	4	30,000	0.5 mSv/y
호주	0	0	76,103	1 mSv/y
러시아	0	31	7,700	0.1 mSv/y
스위스	0	5	10,000	0.1 mSv/y
미국	0	103	740	0.04 mSv/y
WHO	NA	NA	10,000	0.1 mSv/y

음용수 기준 국제 비교(?)

- 캐나다, WHO 및 유럽의 경우 기준선량수준(RDL)으로 0.1 mSv/y 적용함

$$GL = \frac{RDL}{DCF \times Q} = \frac{1 \times 10^{-4} Sv/y}{730 L/y \times 1.8 \times 10^{-11} Sv/Bq} = 7,610 Bq/L$$

- WHO에서는 상기 결과를 올림, 캐나다는 버림하여 적용 중
- EU의 경우 제한치가 아닌 선별준위로 100 Bq/L 적용(100 Bq/L 이상 검출된 경우 다른 인공핵종 존재 가능성을 지시)
- 핀란드, 호주는 각각 기준선량수준(RDL)으로 0.5 mSv/y, 1 mSv/y 채택
- 미국은 ICRP 선량환산인자가 아닌 NCRP 선량제한치(1970년) 근거하여 설정
 - 1991년 ICRP 선량계수 이용 재계산한 결과 0.04 mSv/y에 해당하는 농도는 2,253 Bq/L로 평가되었지만, 보수적으로 740 Bq/L 적용중임
 - NRC는 음용수로 사용되지 않는 경우 1,110 Bq/L 적용

수질 기준의 의미

무엇을 하기 위한 기준인지

- 방출수?
- 음용수?
- 음용을 위한 원수?
- 농사 등을 위한 용수?
- 사용후 핵연료 냉각수?
- 원전부지 내부용?

한국 방사능 방호의 문제점

- 방호가 필요한 모든 가능한 노출경로와 상황에 대한 기초자료와 모델구축에서의 불확실성을 파악하고 이를 메우지 못함
 - 환경으로의 방출 관리가 허술할 수 있는지?
 - 2016년 이후 환경 측정이 왜 달라지는지?
 - 어떠한 경로들이 가능한지?
 - 경로 상에 생체축적이 일어나고 있는지?
- 가장 중요한 점검 항목인 건강영향의 실체를 확인하고 있지 못함

(정리3) 한국의 건강영향 선량 기준 비교

- 일개 환경 매체에서의 방사선 선량은 여러 의미를 가짐
 - 환경 중 매체의 거동 양상과 속도
 - 환경 중 거동을 반영하여, 노출 경로 상 특정 매체의 노출 수준
 - 그 자체가 전체 노출을 대표하여 종합적 노출 가능성의 수준
- 한국에서의 선량기준 비교를 위한 선량환산은 이상의 여러 서로 다른 의미들과 환경 중 거동, 생체 흡수 경로, 다양한 방식의 생활 양상과 노출들을 고려하지 않은 상태에서 일개 특정 매체의 기준에만 의존함
 - 특히 삼중수소가 포함된 유기물(농수산 식품 등)에 대한 고려가 전혀 없음
- 한국 정부의 기대 혹은 목표 보호수준이 막연한 상태에서 제시되는 기준의 의미(관리의 목표)가 없이 기계적으로 선량 기준과 비교하고 있음

결론

- 월성 원전 주변 지역은 전국 평균 수준과 비교하여 100~1000배에 이르는 삼중수소 선량에 노출되고 있음
- 한편 삼중수소 노출과 관련하여 환경 중 거동 및 신체 내 거동이 매우 제한적으로만 측정 감시되고 있음
 - 원전 주변지역 환경 중 지하수에서의 수준 감시 없음
 - 주변 농수산물에서의 수준 감시 없음
- 현재 월성원전에서 일부 측정되는 수준은 다른 나라에서 측정되는 수준 및 기준과 비교하여 매우 높은 수준임