

동남 베링해 요각류와 난바다곤쟁이류의 $^{239,240}\text{Pu}$ 함량

홍기훈 · 이상한 · 이원철*

한국해양연구소 해양화학연구부

*한국해양연구소 극지연구센터

$^{239,240}\text{Pu}$ in *Neocalanus Cristatus* and *Thysanoessa* sp.
in the Southeastern Bering Sea

Gi Hoon HONG, Sang-Han LEE, and Won-Cheol LEE*

Chemical Oceanography Division, KORDI
Ansan P.O. Box 29, Seoul 425-600, Korea

**Polar Research Center, KORDI*
Ansan P.O. Box 29, Seoul 425-600, Korea

Reprinted from
OCEAN RESEARCH
Vol. 18 Special

동남 베링해 요각류와 난바다곤쟁이류의 $^{239,240}\text{Pu}$ 함량

홍기훈 · 이상한 · 이원철*

한국해양연구소 해양화학연구부

*한국해양연구소 극지연구센터

$^{239,240}\text{Pu}$ in *Neocalanus Cristatus* and *Thysanoessa* sp. in the Southeastern Bering Sea

Gi Hoon HONG, Sang-Han LEE, and Won-Cheol LEE*

Chemical Oceanography Division, KORDI
Ansan P.O. Box 29, Seoul 425-600, Korea
*Polar Research Center, KORDI
Ansan P.O. Box 29, Seoul 425-600, Korea

Abstract : Two major zooplankton species of copepods and euphausiids in the southeastern Bering Sea were analysed for $^{239,240}\text{Pu}$ contents in order to assess the anthropogenic radionuclide pollution. $^{239,240}\text{Pu}$ concentration in *Thysanoessa* sp. and *Neocalanus cristatus* are 0.04 ± 0.01 and $0.12 \pm 0.05 \text{ Bq/kg dry wt.}$, respectively. $^{239,240}\text{Pu}$ contents in the major zooplankton species in the Bering Sea fall within the reported values in the Northeast Pacific Ocean.

Key words : 베링해(Bering Sea), 동물플랑크톤(Zooplankton), $^{239,240}\text{Pu}$.

서 론

해양생태계 먹이연쇄에서 금속원소의 생물이용성(bio-availability)과 영양단계상 전이(trophic transfer)는 지구상의 금속원소 순환과 해양생물에 대한 영향 및 독성측면에서 중요하다. 해수중 용존태의 금속은 생물에 수동적으로 흡착되며 또한 동물은 식물플랑크톤 또는 하위영양단계의 동물을 먹이로서 섭취함으로써 금속을 능동적으로 체내에 농축하게 된다(Fisher and Reinfelder 1995). $^{239,240}\text{Pu}$ 은 독성이 강하여 생태계 및 인류보건에 영향을 미칠 수 있다. $^{239,240}\text{Pu}$ 은 과거 1960년대 초반까지의 대기중 핵실험의 부산물로서 성층권과 대류권을 경유하여 전세계 해양으로 유입되었다(Perkins and Thomas 1980). 또한 핵관련산업 및 군수산업의 폐기물 처리시 부산물로 연안해양으로 유입되기도 한다(IAEA 1991 ; White Book 1993). 연안 해양에 유입된 Pu는 해저퇴적물과 해수간의 분배계수(Kd)가 5×10^4 으로 매우 커서(IAEA 1985) Irish Sea에서는 유입된 Pu의

95%가 해저퇴적물에 흡착되어 있다(Connel and Miller 1984). 대양에서는 해양의 표층으로 유입된 Pu는 해양의 상층에서 식물플랑크톤, 해중쇄설입자, 동물플랑크톤의 분변립등 생물기원 입자에 농축된다. 이들 생물기원입자들은 중력에 의하여 심층으로 침강하여 표층해양으로부터 용존 $^{239,240}\text{Pu}$ 를 제거하게 된다(Fowler *et al.* 1983 ; Fowler and Knauer 1986). 동물플랑크톤은 표층해양에서 심층해양으로 오염물질을 운반하는 중간자로서 친입자성 원소들의 체류 시간과 수직 분포를 주로 결정한다(Masuzawa *et al.* 1988). 본 연구의 목적은 우리나라 원양어업의 주요기지인 동남 베링해에서의 러시아 핵폐기물 해양투기(White Book 1993)의 영향을 조사하고 인공방사성핵종의 생물이용성과 영양 단계상의 전이과정을 조사연구하기 위한 기초작업의 일환으로 주요 동물플랑크톤종의 체내 $^{239,240}\text{Pu}$ 핵종함량을 정량하는데 있다.

재료 및 방법

동물플랑크톤은 1995년 7월 베링해 보고슬로프해역과 공해의 대륙붕과 대륙사면(53°17'~57°30'N, 165°48'~179°30'E)에서 지름 60cm, 망목 333 μ m의 붕고네트를 이용하여 총 18정점에서 채집한 후 현장에서 분류군 별로 분류하여 냉동 보관하였다(Lee and Kim, this volume). 실험실에서 동물플랑크톤을 증류수로 씻어서 염분을 제거하였다. 각 조사 정점별 동물플랑크톤 채취량이 $^{239,240}\text{Pu}$ 를 정량 분석하기에는 부족하여 모든 정점에서 채취한 동물플랑크톤 개체를 주요 출현종인 *Neocalanus cristatus*와 *Thysanoessa* sp.로 구분하여 각각 합하였다. 따라서 여기서 보고하는 $^{239,240}\text{Pu}$ 값은 조사해역의 평균치이다. $^{239,240}\text{Pu}$ 정량방법은 주로 Wong (1971)과 Volchok and Planque (1983)의 방법을 사용하였으며 본 연구에서 사용한 자세한 방법은 다음과 같다.

(1단계 : 전처리)

냉동건조 시킨 시료를 곱게 갈아서 무게를 측정후 수 gram의 oxalic acid를 첨가하여 도가니에 담아 전기로에서 550°C에서 24시간 동안 태운다. 시료에 적당량의 회수를 추적자 ^{242}Pu (20mBq)를 넣고 8M HNO₃으로 용해시킨다. 용해시 H₂O₂ 몇 방울을 첨가하며 저어 주고 산 50ml당 NaNO₂ 100mg을 가하고 천천히 가열한다.

(2단계 : $^{239,240}\text{Pu}$ 분리)

증류수와 음이온 교환수지(AG1X8, 100~200mesh)를 잘 섞어 분리관(diameter 0.8cm, height 10cm)에 채운 후 증류수 30ml와 8M HNO₃ 50ml을 차례로 통과시킨다. 산용해된 동물플랑크톤시료(1단계)를 1~2ml/min.의 속도로 용리시킨다. 연이어 8M HNO₃ 80ml를 통과시켜 Mn, Fe 등을 용

리시키고, 100ml의 10M HCl를 사용하여 Th 등을 용리한다. 최종적으로 100ml의 9M HCl-0.1M NH₄I로 Pu를 용리시킨 후 용리시킨 용액을 100ml 비이커에 담아 hot plate에서 용액을 거의 증발시킨다. 여분의 iodine을 제거하기 위하여 진한 HNO₃ 5~10ml를 가한 다음 H₂O₂를 여러 방울 가하면서 증발시킨다. 남은 용액을 건조시킨 후 10M HCl에 녹이고 이를 다시 길이 5cm인 AG1X8 음이온 교환수지에 통과시켜 2차적으로 Pu를 정제한다.

(3단계 : 전기장착)

Pu 용리액에 0.3M Na₂SO₄ 1ml를 넣어주고 증발시킨 후 진한 H₂SO₄ 300 μ l를 넣어주고 시료가 녹아 하얀 연기가 나타날 때까지 가열한다. 4ml의 증류수를 가하고 thymol blue 2방울을 넣어주고 NH₄OH를 가하여 pH를 2로 조정한다. Pu용리액을 stainless steel disc를 장착한 electrodeposition cell로 1% H₂SO₄ 5ml를 사용하여 옮긴 후 암모니아수를 가하여 pH를 2.1~2.4로 조정한다. 총 부피는 20ml를 넘지 않도록 한다. 양극(백금선)을 disc에서 3mm 간격으로 떼어놓고 1시간 동안 1 A 조건하에서 전기장착하고 종료 1분전에 진한 암모니아수 1ml를 넣어 준다. disc를 1% 암모니아수와 aceton으로 세척 후 hot plate상에서 천천히 가열하여 말린다. 건조된 disc를 PIPS 검출기에 넣어 alpha spectrometry로 계수한다.

(4단계 : 분석품질보증)

분석의 정확도 및 정밀도는 표준 물질 IAEA134(cockle flesh)와 IAEA135(sediment)를 분석하여 검정하였으며 $^{239,240}\text{Pu}$ 의 경우 정확도는 평균 97% 이상이었으며 정밀도는

Table 1. Accuracy and precision of Pu isotope analysis.

IAEA 134(cockle flesh)						
Chemical Species	Sample No.	Measured activity (Bq/kg)	Recommended Value	Confidence Interval	Accuracy (%)	Precision (%)
$^{239,240}\text{Pu}$	1	15.2 ± 0.6	15	13.8-16.2	98	0.9
	2	15.4 ± 0.5				
	mean	15.3 ± 0.5				
^{238}Pu	1	3.0 ± 0.1	3.1	3-3.4	100	2.3
	2	3.1 ± 0.1				
	mean	3.1 ± 0.1				
IAEA 306(sediment)						
Chemical Species	Sample No.	Measured Activity (Bq/kg)	Recommended Value	Confidence Interval	Accuracy (%)	Precision (%)
$^{239,240}\text{Pu}$	1	5.8 ± 0.2	5.7	5.5-6.3	96.5	1.9
	2	6.0 ± 0.3				
	3	6.0 ± 0.2				
	mean	5.9 ± 0.2				
^{238}Pu	1	0.15 ± 0.2	0.17	0.14-0.19	100	11.7
	2	0.17 ± 0.3				
	3	0.19 ± 0.2				
	mean	0.17 ± 0.2				

2% 이하였다(Table 1).

결 과

1995년 하계에는 요각류의 일종인 *Neocalanus cristatus*가 거의 모든 정점에서 70% 이상의 출현빈도를 차지하고 난 바다곤쟁이류의 일종인 *Thysanoessa* sp.와 모악류 및 단각류가 그 나머지를 차지하였다(Lee and Kim, this volume). 난바다곤쟁이류와 요각류의 ^{239,240}Pu 함량은 각각 0.04±0.01과 0.12±0.05 Bq/kg dry wt.이다(Table 2). 베링해의 동물플랑크톤의 ^{239,240}Pu 평균 함량은 1986년 북동태평양(Fowler et al. 1991; Fowler and Knauer 1986)과 이오니아해(Triulzi et al. 1982)에서 보고된 값과 유사하거나 다소 높으며 1983년 북동태평양에서 보고된 값(Fowler et al. 1987) 보다는 크게 낮다(Table 3).

Table 2. ^{239,240}Pu concentrations in two major zooplankton species from the southeastern Bering Sea(Bq/kg dry wt.).

Plankton	^{239,240} Pu (Bq/kg)	Body size (mm)
Euphausiid(<i>Thysanoessa</i> sp.)	0.04±0.01	10.0~24.0
Copepod(<i>Neocalanus cristatus</i>)	0.12±0.04	<5.0

and Nakamura 1993). 해수중의 ^{239,240}Pu의 총현존량(water column inventory)은 1973~1974년의 74MBq km⁻²(Bowen et al. 1980)에서 1988년의 37MBq km⁻²(Nagaya and Nakamura 1993)으로 감소하였다. 이러한 해수중 ^{239,240}Pu 총현존량의 감소는 ^{239,240}Pu이 표층해양으로부터 점진적으로 심층해양으로 생물기원 입자에 흡착 및 포장되어서 침강하기 때문인 것으로 판단된다.

해양생물의 Pu 함량은 주로 생물의 체표면적의 체중에 대한 비율(비표면적, specific area)이 크면 높다. 즉, Pu 함량은 식물플랑크톤, 요각류, 난바다곤쟁이류 순으로 낮아진다(Fisher and Fowler 1987). Bering해에서도 Pu 함량은 단위무게당 표면적이 큰 소형동물플랑크톤인 요각류에서 높고 단위무게당 표면적이 작은 난바다곤쟁이류에서 낮다(Table 2). 일반적으로 actinides 원소들은 class A(hard sphere) 금속으로서 해수중 산소리간드와 주로 결합하게 되고 질소나 황 리간드와는 결합하지 못하므로(Stumm and Morgan 1981) 생리기능(biological function)이 없어 식물세포내로 침투하지 못하고 주로 세포표면에 흡착된다(Fisher and Reinfelder 1995). 즉 식물플랑크톤이 동물플랑크톤보다 Pu 함량이 높은 것은 동물플랑크톤보다 비표면적(specific area)이 커서 흡착되는 양이 많기 때문이다.

동물플랑크톤 체내의 Pu 함량은 분변립에서의 함량보다 낮다(Fowler 1990). 난바다곤쟁이류 체내의 Pu 잔류시간은

Table 3. ^{239,240}Pu concentrations in zooplanktons over the various world oceans.

Sites	Sample	Concentration (Bq/kg)	Sampling Date	Reference
Vertex I (Northeastern Pacific)	Zooplankton (microplankton)	0.481	1980	Fowler et al. 1983
Ionian Sea	Zooplankton (Copepods)	0.032	1975	Triulzi et al. 1982
Vertex (Northeastern Pacific)	Zooplankton (all size combined)	0.046	1986	Fowler et al. 1991
Bering Sea	Copepod	0.12±0.04	1995	This study
Bering Sea	Euphausiid	0.04±0.01	1995	This study

고 찰

인공방사성동위원소의 과대한 피폭은 어류의 생식과정을 교란시켜 돌연변이를 유발할 수 있다. 어류알은 방사성동위원소에 극히 민감하며 생식력이 빈약한 어류는 더욱 생식력이 감소하는 한편 생식력이 왕성한 일부 종은 저농도의 방사선에 피폭되었을 때 생존률이 오히려 증가한다(Connell and Miller 1984).

베링해의 ^{239,240}Pu 조사연구는 북극해나 적도태평양에 비하여서 매우 드물게 수행되었다(Bowen et al. 1980; Nagaya

1990). 이는 Pu가 신진대사적으로 꼭 필요한 원소가 아니기 때문에 섭취한 Pu의 90% 이상은 분변립으로 배출되고 체내에 축적되는 양은 섭취량의 10%에도 못미치기 때문이다(Fowler et al. 1991). Pu의 생물농축계수는 식물플랑크톤은 약 10⁵, 동물플랑크톤은 약 10⁸, 그리고 어류는 약 10¹²로서 영양단계가 높아지면 감소한다(IAEA 1985). 따라서 Pu의 체내함량은 먹이사슬에서 더 높은 영양단계로 갈수록 점점 감소하므로 Pu는 생태계에서 비유동적인 원소이다. 요각류와 난바다곤쟁이류등 초식성 동물플랑크톤은 베링해 육식성 동물의 주요한 먹이로서

일차 생산자와 육식성 동물간의 중금속 전이의 중간 매개자이다. 동물플랑크톤은 Pu를 분변립, cast appendicularian house, 탈피시 갑각류의 골격등 생물 폐기물로 포장하여 배출하기 때문에 초식동물은 Pu 금속을 식물플랑크톤으로부터 육식동물로의 전이를 완화시켜 주는 중화자로서 역할을 수행하게 된다.

베링해에는 요각류가 광범위하게 존재하고 생물 현존량이 커서 분변립 생산을 통한 $^{239,240}\text{Pu}$ 의 수직침강을 주도할 것으로 사료된다. 또한 외골격(exoskeleton)의 탈피(molting)도 $^{239,240}\text{Pu}$ 침강에 크게 기여한다. 요각류는 성체로 성장하면서 여러 번의 탈피과정을 거치며(Parsons *et al.* 1977) 탈피과정에서 외피들은 살아있는 몸체를 이탈한 후 서서히 침강하면서 Pu을 포함한 용존원소들을 흡착한다(Michaelis and Flegal 1990). 탈피 외골격은 침강도중 수중에서 쉽게 분해되지 않으므로 Pu의 저층퇴적물로의 이동운반체로서 크게 기여할 것으로 사료된다.

베링해의 동물플랑크톤 체내 Pu함량은 전세계 해양의 동물플랑크톤의 평균치와 유사하며 이지역 생태계에서 먹이연쇄를 통한 생물농축에는 큰 영향을 주지 않을 것으로 판단된다. 향후 본 조사지역의 모든 출현종의 체내 및 외골격, 분변립의 Pu 함량연구는 표층해양에서 심층해양으로의 Pu 및 그의 Am, Pb등 친입자성 화학물질의 이동 및 변천과정 이해에 크게 기여할 것이다.

사 사

한국해양연구소 양동범 박사님과 부산대학교 이동섭 교수의 건설적 비평으로 본 논문의 질이 크게 향상되었습니다. 본 연구는 수산청(BSPG00233)과 과학기술처(BSPN 00280)의 지원으로 이루어진 것입니다.

요 약

베링해에서 인공방사성 핵종 $^{239,240}\text{Pu}$ 의 분포양상 및 거동을 이해하기 위하여 동물 플랑크톤의 체내 Pu 함량을 정량하였다. 주요 출현군인 요각류(*Neocalanus cristatus*)와 난바다곤쟁이류(*Thysanoessa* sp.)의 $^{239,240}\text{Pu}$ 함량은 각각 0.12 ± 0.05 과 $0.04 \pm 0.01 \text{ Bq/kg dry wt.}$ 이며 과거의 북동태평양 조사결과와 유사하였다.

참고문헌

- Bowen, V.T., V.E. Noshkin, H.D. Livingston, and H.L. Volchok. 1980. Fallout radionuclides in the Pacific Ocean: Vertical and horizontal distributions, largely from GEOSECS stations. *Earth and Planetary Science Letters*. 49: 411-434.
- CConnell, D.W. and G.J. Miller. 1984. *Chemistry and Ecotoxicology of Pollution*. Wiley-Interscience Pub., New York. 444p.
- Fisher, N.S. and S.W. Fowler. 1987. The role of biogenic debris in the vertical transport of transuranic wastes in the sea. P.197-207. *In* O'Connor, T.P., W.V. Burt, and I.W. Duedall eds., *Oceanic Processes in Marine Pollution*, Vol. 2, Physicochemical Processes and wastes in the Ocean. R.E. Krieger Publ. Co, Inc, Malabar, Florida.
- Fisher, N.S. and J.R. Reinfelder. 1995. The trophic transfer of metals in marine systems. P.363-406. *In* Tessier, A. and D.R. Turner eds., *Metal speciation and bioavailability in aquatic systems*.
- Fowler, S.W. 1982. Biological transfer and transport processes. P.1-65. *In* G. Kullenberg ed., *Pollutant transfer and transport in the sea*, Vol 2. CRC Press, Boca Raton, Florida.
- Fowler, S.W. and G.A. Knauer. 1986. Role of large particle in the transport of element and organic compounds through the oceanic water column. *Prog. Oceanogr.* 16: 147-194.
- Fowler, S.W., L.F. Somall, J. La Rosa, J.J. Lopez, and J.J. Teysie. 1991. Interannual variation in transuranic flux at the vertex time-series station in the northeast pacific and its relationship to biological activity. P.286-596. *In* Kershaw, P.J. and D.S. Woodhead eds., *Radionuclides in the Study of Marine Processes*. Elsevier Applied Science, London.
- Fowler, S.W., S. Ballestra, J. La Rosa, and R. Fukai. 1983. Vertical transport of particulate-associated plutonium and americium in the upper water column of the Northeast Pacific. *Deep-Sea Res.* 30: 1221-1233.
- IAEA. 1985. Sediments K_d s and concentration factors for radionuclides in the marine environment. *Tchn. Rep. Ser. No.247*. IAEA, Vienna. 71p.
- IAEA. 1991. Inventory of radioactive material entering the marine environment. IAEA, Vienna. 54p.
- Masuzawa, T., M. Koyama, and M. Terazaki. 1988. A regularity in trace element contents of marine zooplankton species. *Mar. Biol.* 97: 587-591.
- Michaelis, A.F. and A.R. Flegal. 1990. Lead in marine planktonic organisms and pelagic food webs. *Limnol. Oceanogr.* 35: 287-295.
- Nagaya, Y. and K. Nakamura. 1993. Distributions and mass-balance of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in the northern North Pacific. *In* Teramoto ed., *Deep ocean circulation, physical and chemical aspects*. Elsevier Oceanographic Series 59: 157-167.
- Parsons, T.R., M. Takahashi, and B. Hargrave. 1977. *Biological oceanographic processes*. Pergamon Press. Oxford. 332p.
- Perkins, R.W. and C.W. Thomas. 1980. *Worldwide fallout*.

- P.53-85. In W.C. Hanson ed., *Transuranic elements in the environment*, U.S. Department of Energy TIC-22800, Washington, D.C.
- Stumm, W. and J.J. Morgan. 1981. *Aquatic chemistry: An introduction emphasizing chemical equilibria in natural waters*. John Wiley and Sons Pub., New York. 780p.
- Triulzi, C., A.D. Site, and V. Marchionni. 1982. ^{239,240}Pu and ²³⁸Pu in Seawater, Marine Organisms and Sediments of Taranto Gulf (Ionian Sea). *Estuar. Coast. Shelf Sci.* 15 : 109-114.
- Volchok, H.L. and G. De Planque. 1983. *EML Procedures Manual*, Rep. HASL-300, 26th ed., Environmental Measurements Laboratory, New York.
- White Book. 1993. *Government commission report on questions concerning nuclear waste disposal in seas*. Moscow. 95p.
- Wong, K. M. 1971. Radiochemical determination of plutonium in seawater, sediments and marine organisms. *Anal. Chim. Acta* 50 : 355-364.

Received April 22, 1996

Accepted July 22, 1996