

방사성핵종 오염 토양 특성 분석 및 핵종제거 방법 연구

김 계남 · 원 휘준 · 오 원진

한국원자력연구소
kimsum@kaeri.re.kr

ABSTRACT

Main radionuclides of the soil waste stored in Korea Atomic Energy Research Institute are Co-60 and Cs-137. Moisture content of soil is 12%, pH of soil is 5.8, and content of organic matter is 2.2 %. Radioactive concentrations of the soil particle size of which is less than 0.063mm and soil in the drum surface of which is more than radiation dose rate 0.05mR/hr are higher. Meanwhile, radioactive concentration of soil in the drum surface of which is less than radiation dose rate 0.02 mR/hr are mostly lower. On using the mixing solution of ammonium sulfate and citric acid, 62% Co was removed from soil and 41% Cs was removed. Also, on using the mixing solution of ammonium nitrate and citric acid, 61% Co was removed from soil and 39% Cs was removed, and on using the mixing solution of ammonium potassium oxalate, 36% Co was removed and only 3% Cs was removed. And on using only water, removal efficiency is less than 5%.

Key words : Radioactive Concentration, Soil Waste, Removal Efficiency, Citric Acid

1. 서론

한국원자력연구소 내의 방사성폐기물 저장고에 보관중인 방사성오염토양을 대상으로 방사성핵종 오염 특성과 토양으로부터 방사성핵종을 제거하기 위한 방법을 연구했다. 보관된 토양폐기물은 드럼표면에 십여년 전 200L 드럼에 담을 때 측정된 0.01-0.05mR/hr의 방사선 선량이 표기되어있다. 오염된 방사성핵종은 주로 Co-60와 Cs-137이었다. 오염된 토양을 착화제를 사용하여 추출하는 Soil Washing 방법은 좀더 효과적인 토양제염 방법 중의 하나로 널리 이용되고 있다. 현재 Co 제염을 위해 상업적으로 이용할 수 있는 착화제중 EDTA가 가장 효과적으로 보여지지만, EDTA는 비용이 높고, 제염시 토양에 오랫동안 잔류하며 상당한 악영향을 미친다. 그러므로 본 연구에서는 EDTA 대신에 토양내에서 생물학적으로 분해 가능한 Citric acid를 사용하였다. 한편 Cs를 제거하기 위해 착화제로 Ammonium Sulfate, Ammonium Nitrate, Ammonium Potassium Oxalate 등을 사용하였다. 오염된 토양을 착화제를 사용하여 제염할 때, 서너 번 이상 세척해야 좀더 높은 제염효율을 얻을 수 있기 때문에 많은 양의 착화제가 소요된다. 그러므로 이 착화제의 부피를 감소시키기 위해 세척폐액을 반복해서 재사용하거나 또는 재생시켜 사용하는 방법이 필요하다.

2. 본 론

(1) 토양 폐기물 방사성 오염특성

가. 토양 폐기물 방사능 오염형태

원자력 연구소 내에 보관 중인 토양폐기물은 1988년 원자력시설 주변으로부터 수거한 토양이며 주요 오염 핵종은 Co-60와 Cs-137 이다. 채취된 토양은 총 4482 드럼으로 방사능 오염 정도는 1988년도의 표면 접촉선량 단량률을 기준으로 0.5 mR/hr 이상(333드럼), 0.2 ~ 0.5 mR/hr(2675드럼), 0.2 mR/hr 이하(1474드럼)로 구분할 수 있다.

나. 토양 폐기물 보관 형태

수거한 토양폐기물은 순수한 토양, 토양과 콘크리트의 혼합형태 등으로 분류되어 있다. 토양은 비닐에 의해 포장되어 있고 토양의 함수량은 12%이므로 체분리시 물을 사용해야 한다.

다. 토양 분석 결과

채취한 토양을 건조, sieving 후 토양 pH, 유기물 함량 및 조성 분석 수행으며, 물과 토양 비율이 5 : 1 일때의 pH 는 5.8, 유기물 함량은 2.2 % 이었다.

라. 토양폐기물 방사능 분석

MCA로 오염토양의 γ -방사능을 측정하였다. Energy 및 Efficiency calibration을 위해 한국 표준연구원에서 제공한 표준 시료인 QCY48(Amersham)을 사용하였다. 분석 가능

표 1. 토양폐기물의 입도별부피 및 Co, Cs의 방사능농도

폐기물드럼농도	입자크기	평균부피(%)	Co-60(Bq/kg)	Cs-137(Bq/kg)
0.05mR/h이상 (7%)	1.0mm이상	28.3	38.9-233.7	1.5-886.0
	0.063-1.0mm	61.2	155.2-1079.3	16.3-6700.2
	0.063mm이하	10.5	480.5-6645.0	47.1-19547.0
0.02-0.05mR/h (33%)	1.0mm이상	48.5	2.6-24.0	0.3-35.1
	0.063-1.0mm	46.5	6.3-217.8	13.9-436.7
	0.063mm이하	5.0	31.1-316.4	287.9-1663.7
0.02mR/h이하 (60%)	1.0mm이상	52.4	5.3-15.2	2.5-7.0
	0.063-1.0mm	43.1	14.1-69.1	25.4-53.0
	0.063mm이하	4.5	56.3-204.7	85.6-377.2

한 핵종은 Am-241, Cd-109, Co-57, Ce-139, Hg-203, Sn-113, Sr - 85, Cs-137, Y-88, Co-60 이었다. 총 50 여 개의 방사성 토양 시료를 0.1 Bq의 민감도로서 측정하였고 결과는 표1과 같이 0.063mm이하의 미세입자와 표면선량 0.05mR/hr이상 드럼내 토양의 방사능 농도가 높았고, 0.02 mR/hr이하 드럼내 토양의 방사능 농도는 대부분 낮았다.

(2) 토양내의 방사성핵종 제거

가. 오염특성에 따른 토양제염방법

원자력시설 해체시 β, γ 에 대한 Authorized Clearance Level은 400 Bq/kg이므로 한국원자력연구소 폐기물저장고에 보관중인 4,482드럼에 대한 제염 방법은 표 2와 같이 예측된다. 즉, 60-70% 토양은 입도분리만으로 제염가능하며 20-30%는 Soil Washing에 의해 나머지 1.0 mm이하의 토양은 동전기방법이나 고화에 의해 제염가능하다.

표 2. 토양제염 방법

입도분리	Soil Washing	고화, 동전기
60 ~ 80%	20 ~ 30% (0.063mm 이상)	3 ~ 7% (1.0mm 이하)

표 3. 토양세척법에 의한 제염실험 결과

토양세척방법(0.05mR/hr)	Co-60	Cs-137
입도분리 시 물로 씻고 건조한 흙(1.0mm 이상)	316.7	1139.9
물로 2번 씻고 건조한 흙(1.0mm 이상)	319.4	1149.6
0.063mm~1.0mm 건조토양	1028.0	6015.8
Citric Acid 0.05M로 1번 세척 토양(0.063mm~1.0mm)	647.1	5386.5
Citric Acid 0.05M로 2번 세척 토양(0.063mm~1.0mm)	461.2	5261.9
Citric Acid 0.05M로 3번 세척 토양(0.063mm~1.0mm)	389.4 (62.1%)	5187.9 (13.8%)
Citric 0.05M + Ammonium Sulfate 0.2M 3번 세척한 토양(0.063~1.0mm)	392.6 (61.8%)	3571.9 (40.6%)
Citric 0.05M + Ammonium Nitrate 0.2M 3번 세척한 토양(0.063~1.0mm)	403.8 (60.7%)	3682.5 (38.8%)
Citric 0.05M + Ammonium Potassium Oxalate 0.2M 3번 세척한 토양(0.063~1.0mm)	659.6 (35.8%)	5829.7 (3.1%)

나. Soil Washing에 의한 토양 세척

원자력연구소 내 보관중인 방사성핵종 오염토양을 대상으로 Soil Washing 방법에 의한 토양세척실험을 수행하였다. 먼저 오염토양은 체분리를 하여 미세입자와 굵은입자는 제거하고 0.063-0.1mm 토양입자만을 대상으로 하였다. 오염토양은 물, Citric acid, Ammonium sulfate, Ammonium nitrate, Ammonium potassium oxalate등을 사용하여 3회에 걸쳐 반복 세척한 후 MCA(Multi Channel Analyzer)를 사용하여 잔류방사능 농도를 측정했다. Ammonium sulfate와 Citric acid 혼합액 사용시 Co는 62% 그리고 Cs는 41 % 각각 제염되었다. Ammonium nitrate와 Citric acid 혼합액 사용시 Co는 61% 그리고 Cs는 39% 각각 제염되어 Ammonium sulfate와 Citric acid 혼합액 사용시와 비슷한 제염효율을 나타내었다. Ammonium potassium oxalate 사용시 Co는 36% 그리고 Cs는 3% 각각 제염되어 제염효율이 낮았다. 한편 물만 사용하여 세척시 제염효율은 5% 미만으로 나타났다. 물만 사용하여

세척할 때, 제염효율을 높이기 위해 세척 후 토양입자와 세척시 토양입자표면에서 떨어져 나온 미세분진을 분리할 수 있는 Hydrocyclone 또는 Spiral classifier 등의 사용이 필요하다.

3. 결론

원자력연구소에 보관된 토양 폐기물의 주요 오염 핵종은 Co-60와 Cs-137 이다. 토양의 함수량은 12%이고 pH 는 5.8이며 유기물 함량은 2.2 % 이었다. 0.063mm이하의 미세입자와 표면선량 0.05mR/hr이상 드립내 토양의 방사능 농도가 높았고, 0.02 mR/hr이하 드립내 토양의 방사능 농도는 대부분 낮았다. Ammonium sulfate와 Citric acid 혼합액 사용시 Co는 62% 그리고 Cs은 41 % 제염되었다. Ammonium nitrate와 Citric acid 혼합액 사용시 Co는 61% 그리고 Cs은 39% 제염되었고, Ammonium potasium oxalate 사용시 Co는 36% 그리고 Cs은 3% 각각 제염되어 제염효율이 낮았다. 한편 물만 사용하여 세척시 제염효율은 5% 미만으로 나타났다.

4. 참고문헌

1. Peters R. W., "Chelant Extraction of Heavy Metals from Contaminated Soils", J. of Hazardous Materials, 66, pp.151 ~ 210(1999).
2. Francs, A. J., "Removal and recovery of Radionuclides and Toxic Metals from Wastes", *Soils and Meterials, BNL*. pp.49508(1993).
3. Mean, J. L., Kucak, T., and Crerar, D. A. Relative degradation rates of NTA, EDTA, and DTPA and environmental implications", *Environ. Pollut.(Ser. B)* 1: pp.45~ 60(1980)