

Verification of Pilot Scale Soil Washing Equipment on Nuclear Power Plant Soil

원자력발전소 토양에 대한 파일럿 규모 토양세척기술 실증

Jung-kwon Son, Ki-doo Kang, Hak-soo Kim, Kyoung-rock Park
and Kyoung-doek Kim

Nuclear Environment Technology Institute, P.O.Box 149, Yuseong, Daejeon, Korea

jkson1@khnp.co.kr

손중권, 강기두, 김학수, 박경록, 김경덕

원자력환경기술원, 대전광역시 유성우체국 사서함 149

(Received August 19, 2004 / Approved December 08, 2004)

Abstract

Soil washing equipment was developed for decontamination of radioactively contaminated soil generated during normal operation or decommissioning and verification experiments were performed. Decontamination efficiency above 80% was achieved. In case of low radiation level and large particle size, decontamination efficiency was higher. According to the ratio of volume of water to soil quantity, decontamination efficiency was higher in case of high radiation level. Re-decontamination using decontaminated soil was effective in case of small particles. Using soil washing equipment, radioactivity of contaminated soil generated in nuclear power plant can be decreased and volume of soil for disposal can be decreased. And this equipment can be used in decommissioning.

Key Words : contaminated soil, Cs, particle separation, soil washing, decontamination equipment

요약

원전의 정상운전이나 해체시 발생될 수 있는 토양의 제염을 위한 토양제염장치를 개발하였으며 실증 실험을 수행하였다. 제염장치를 이용한 제염실험을 종합해본 결과 제염조건에 큰 상관없이 80% 이상의 제염율을 얻을 수 있었다. 방사능 준위 및 토양입도에 의한 실험결과를 보면 낮은 방사능 농도 및 고입도의 제염율이 다소 높음을 알 수 있었다. 제염용액과 토양질량의 비에 따른 제염율은 제염제 부피를 두배로 높였을 경우 방사능 농도가 높은 경우에 큰 것으로 나타났다. 반복 제염은 0.5~2.0mm의 다소 작은 입자에 더욱 효과적으로, 제염이 어려운 작은 입자의 반복제염시 방사능 저감 효과가 비

교적 크게 나타났다. 본 오염토양 제염장치를 활용하면 원전에서 발생하는 오염토양의 방사능 농도를 줄일 뿐 아니라 처분양을 줄여 저장공간의 확보에 기여할 뿐만 아니라 향후 원전의 해체시에도 유용하게 활용될 수 있으리라 생각된다.

중심단어 : 오염토양, 세습, 입도분리, 토양세척법, 제염장치

I. 서론

원자력발전소의 운전과정에서 불가피하게 계통에서 방출되는 미량의 입자상 방사성 물질들은 대부분 원전 부지내 토양에 침적되며, 빗물에 의해 이동되면서 배수로의 침니 등에 서서히 농축된다. 따라서 원전을 장기간 운전하게 되면 특정 지역의 토양에서 장반감기 입자상 핵종들의 오염준위가 상당 수준까지 올라 갈 수 있고, 이로 인해 방사성물질의 부주의한 누출로 오인을 받을 우려가 있다.

이처럼 원자력발전소의 정상운전 과정에서 부지내 토양의 오염준위가 증가될 경우, 허용오염기준이나 토양 오염준위에 대한 정량적인 평가 자료가 없기 때문에 오염도가 높은 지역의 토양을 수거하여 단순히 격리관리하고 있는 실정이다. 그러나 궁극적으로 원전 부지내 토양의 오염은 피할 수 없으며, 또한 원전을 해체하게 될 경우 운전과정이나 해체과정에서 누출된 방사능으로 오염된 토양이 상당량 발생하기 때문에, 방사능에 오염된 토양의 적절한 제염을 통하여 폐기물 발생량을 최소화시킬 필요가 있다.

이를 위하여 오염토양의 제염에 활용되고 있거나 활용 가능성이 높은 여러 가지 제염공정의 일반적인 특성을 조사하였다[1]. 현재 고리원전에서 보관중인 토양의 오염준위와 오염핵종의 종류, 토양의 입도, 입도별 오염분포 등을 조사하였다[2]. 이러한 조사결과들을 토대로 토양 입도분리 및 물을 이용한 토양세척법을 이용한 토양 제염공정을 최적의 오염토양 제염공정으로 선정하여, 토양 입도분리장치, 분리된 토양의 세척장치 및 폐액 재순환 장치로 이루어진 토양 제염장치를 설계하였으며, 제작을 완료하여 발전소 현장에 설치하였다. 물 이외에 구연산, 황산암모늄 및 여러 가지 산성 제염제를 이용한 실험을 수행하였으며 강산의 경우 현장에서의 사용에 어려움이 많았

고 구연산 등은 약간의 제염을 상승 효과는 있으나 큰 차이가 나타나지는 않아 첨가제 없이 물을 사용하였다. 물을 이용한 토양세척법은 원전에서 활용할 경우 유용하다. 화학제염제를 사용할 경우 원전 계통에서 처리해야 하는데 이는 폐기물이 다시 발생하는 것으로 바람직하지 않다. 물을 이용할 경우에는 물을 재사용할 수 있다. 또한 토양세척법은 물의 조건을 변화시킴으로써 제염율을 높일 수 있다.

토양세척법은 방사능 오염 제거 뿐 아니라 납 제거에도 활용될 수 있다. 토양세척법을 이용한 납제거시 가장 중요한 인자는 pH로 나타났으며 낮은 pH에서 높은 제거율을 보였다. pH3에서 EDTA를 추가할시 높은 납제거율을 보였다[3]. Zinc(II)로 오염된 토양을 복원하기 위하여 여러 가지 화학제염제를 이용한 세척법도 활용되고 있다. 이 경우에는 유속을 최저로 하고 제염제로 킬레이트제를 사용할 때 가장 우수한 제거율을 보인다[4]. 바이오매스를 이용하여 중금속 오염토양을 복원하는 기술도 개발되고 있다. 중금속 오염토양은 추출되어 여러 가지 pH 조건에서 바이오매스를 첨가함으로써 중금속이 제거된다. pH4에서 오염토양에 목초(Grass Silage)를 첨가하면 Cd는 약 75%, Cu와 Zn은 50% 이상이 제거되었다[5].

본 연구의 목적은 제작된 토양세척법을 이용한 제염장치가 원자력발전소 토양의 제염에 적합한지 입증하는 것과 각 제염조건에 따른 제염율을 평가하는데 있다.

II. 실험장치 및 방법

가. 실험장치

오염 토양에 적합한 제염 장치를 개발하기 위하여 현재 개발된 각종 토양 제염법을 분석하여 토양 세

척법을 이용한 제염공정을 선정하였다. 토양 세척법을 바탕으로 하는 최적 제염공정 개발 및 제염 장치 개발을 위해 고리원전의 오염토양을 대상으로 방사능 준위, 토양입도, 제염제와 토양의 혼합비, 제염시간 및 제염제 온도 등을 변화시켜가며 실험을 수행하여 데이터를 획득하였다[6]. 획득한 실험 데이터를 기반으로 하여 물세척을 이용한 토양제염장치를 설계하였고 제작하여 실증실험을 하였다.

제염장치는 크게 토양입도 분리장치(Particle Separator), 토양 세척장치(Soil Washer) 및 폐액 재순환장치(Fluid Waste Recirculator)로 구분된다[7]. Fig. 1은 제염장치의 제염공정도를 나타낸다.

토양제염의 첫 번째 목표는 굴착된 토양 중에서 오염토양과 비오염토양을, 또는 제염가능한 토양과 그렇지 않은 토양을 가능한 정확하게 분리하는 것이다. 이러한 분리작업은 원전 해체와 같이 광범위한 영역의 토양을 제염하는 과정에서 다량의 토양폐기물이 발생될 경우 특히 중요한 요소가 되며 토양 폐기물의 양을 일차적으로 줄일 수 있다. 실험에 사용된 오염 토양의 경우 가장 중요한 오염 핵종은 ¹³⁷Cs 이었다. 문헌에서 언급한 바와 같이 대부분의 ¹³⁷Cs이 강한 양이온 교환 반응에 의해 토양과 결합하고 있

는 것으로 판단되었으며 양이온 교환 반응의 비율은 입도의 크기와 방사능 오염도에 따라 큰 차이를 보인다. 입도가 크고 방사능 오염도가 낮을수록 양이온 교환반응에 의한 결합 비율이 낮아 물이나 구연산과 같은 중성염을 사용하더라도 적절한 제염효율을 얻을 수 있는 것으로 판단되었으며, 실험실 규모 실험에서 이를 확인하였다[2]. 따라서 원전에서 발생하는 오염 토양의 경우에는 우선 입도를 분리한 후 허용 오염준위까지 제염이 가능한 입자를 대상으로 적절한 제염제를 이용하여 제염을 수행할 필요가 있는데 2차 폐기물의 처리나 제염 효율을 고려해 볼 때 물을 사용하는 것이 가장 바람직한 것으로 나타났다. 따라서 제염제로 물을 사용하는 오염토양 제염장치로 원전에서 발생된 오염토양의 제염 실험을 수행하였다.

나. 실험방법

오염토양 제염실험을 위해 오염토양 5드럼을 고리에서 영광으로 운송하고 드럼을 개봉하여 선별작업을 수행한 후 제염실험을 수행하였다. 80 mm 이상의 gravel, 나무 형질류 등의 잡고체를 제외한 결과 한 드럼당 실험을 할 수 있는 100±5 kg의 토양을 얻을

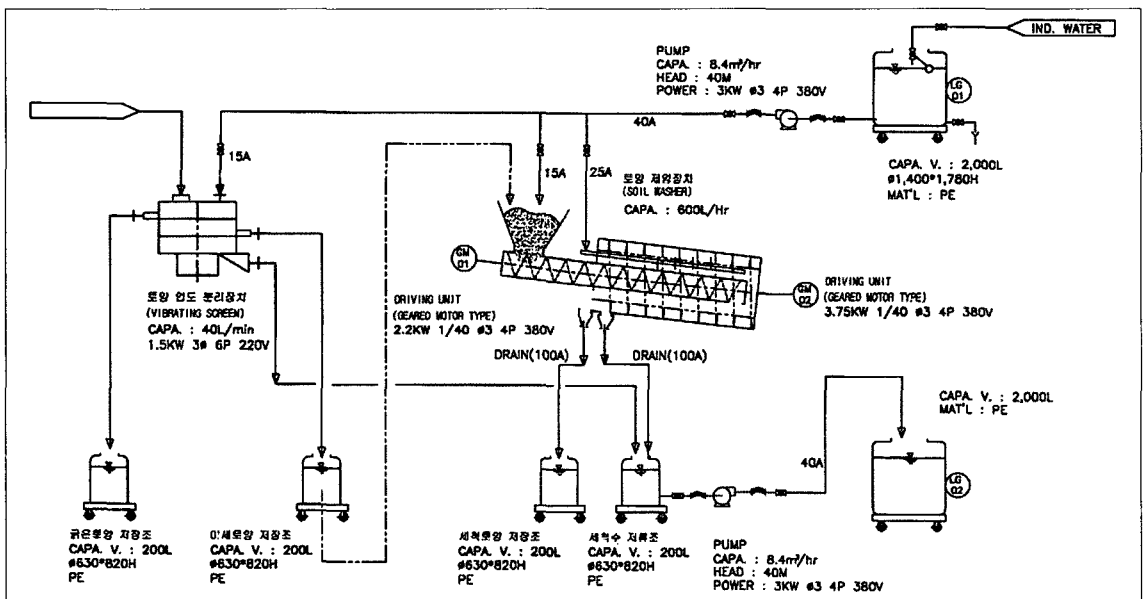


Fig. 1. Process of Soil Decontamination.

수 있었으며 선별된 모든 토양은 30 ± 5 kg씩 분리하였다. 수분이 많이 함유되어 있는 토양은 원활한 입도분리를 위하여 충분히 건조시켰다. 건조된 토양 시료를 각각 2.0 mm 이상, 2.0~0.5 mm, 0.5 mm 이하로 입도분리하여 제염 실험전에 방사능을 계측하였다. 분리 결과 0.5 mm 이하의 미세토양은 $30 \pm 5\%$ 를 차지하였다. 입도별로 방사능 계측된 토양은 방사능 순위 순으로 정렬하였다. 정렬된 토양은 방사능 순위에 따라 토양(1)과 토양(2)로 분류하였으며 0.5 mm 이하의 미세토양은 제염하지 않았다.

건조된 토양을 입도분리한 후 각 토양을 선량율별로 그룹화한 후 실험 목적에 따라 라벨링하여 각각의 조건에 따른 실험을 수행하였다. 토양은 15~30 kg을 제염장치에 분당 1.5 kg씩 주입하면서 제염실험을 하였다. 토양주입시 1차 세척조는 6rpm, 세척수는 토양을 주입하는 동안 분당 $10 \pm 0.5L$ 를 사용하였으며 2차 세척조는 잔류 시간(40분, 60분)을 고려하여 rpm을 조절하였다. 제염완료 토양에 대한 방사능도 계측하였다. 세척수는 폐액 재순환장치를 거쳐서 계속 사용하였는데 재순환장치를 거친 제염폐액은 방사능이 검출되지 않았다. 재순환장치의 성능저하로 세척액을 더 이상 쓰지 못할 경우에는 액체 방사성폐기물 처리계통을 통해 처리할 수 있다.

제염실험은 Table 1에 수록된 바와 같이 방사능 순위, 제염수 양, 제염시간, 토양 입도별로 제염율을 비교할 수 있도록 수행되었다. 제염전 토양, 제염후 토양(건조), 제염폐액의 시료를 채취하여 방사능을 계측하여 제염율을 평가하였다.

Table 1. Experimental Conditions.

토양 분류	토양입도 및 비방사능	제염수와 토양의 비	제염시간
토양(1)	2.0 mm 이상 (1.54×10^2 Bq/g)*	20:1	40분
		20:1	60분
	0.5~2.0 mm (3.45×10^2 Bq/g)*	20:1	40분
		40:1	60분
토양(2)	2.0 mm 이상 (5.63×10^2 Bq/g)*	20:1	40분
		20:1	60분
		20:1	60분
	0.5~2.0 mm (1.53×10^3 Bq/g)*	40:1	60분
		20:1	60분

* 평균 방사능 농도임

III. 결과 및 고찰

본 연구에서는 오염토양의 제염을 목적으로 제염장치를 개발하였고 장치를 이용하여 여러 조건에서 제염실험을 수행하였다. 화학제염제를 사용할 경우의 폐액 처리문제 때문에 물을 제염제로 사용하였다.

제염제로서 물, 구연산과 황산암모늄의 Cs 제염 특성 실험은 실험실에서 수행되었으며 토양 500g에 물, 황산암모늄 및 구연산 0.02M, 0.05M, 0.1M, 0.3M을 각각 1 l 씩 넣고, 2시간 동안 제염하였다. 이때 토양과 물의 접촉이 잘 이루어지게 하기 위해 Shaker를 사용하였으며 2시간 후 약 30분 정도 정체를 시켜 토양을 가라앉힌 후 상등액을 버린 후 증류수를 이용하여 토양을 씻어 토양에서 제염제를 완전히 씻어낸다. 토양의 Silt와 Clay의 수거를 위해 감압 Filter장치를 이용한 후 토양을 Petri Dish에 넣고 80°C Oven에서 완전히 건조시킨 후 다시 입도분리를 하여 입도별로 방사능을 측정하였다. ¹³⁷Cs 제염시 물과 구연산 및 황산암모늄 모두에서 비슷한 제염효과를 보였다. 물과 구연산 황산암모늄은 모두 입도가 0.21 mm 이상인 토양에서는 평균적으로 약 65% 이상의 제염효율을 보였다. 실험실에서의 실험 결과를 토대로 볼 때 물을 사용할 경우 제염율은 약산을 제염제로 사용했을 경우의 제염율과 대동소이했다. 제염율은 다음 식에 의하여 결정하였다.

$$\text{제염율} = ((\text{제염전 방사능 농도} - \text{제염후 방사능 농도}) / \text{제염전 방사능 농도}) \times 100 \dots \dots \dots (1)$$

Fig. 2는 방사능 순위에 따른 오염토양의 제염율을 보여주고 있다. 그림에서 보는바와 같이 2.0 mm 이상의 입자 토양에서는 40분 제염했을 경우 순위에 따른 제염율의 차이가 크게 나타나지 않았으며 60분 제염했을 경우 역시 제염율에는 큰 차이가 없었다. 2.0~0.5 mm의 입자가 비교적 작은 토양에서는 토양(1)과 토양(2)의 제염을 차이가 17% 정도로 나타났다. 2.0 mm 이상의 토양의 경우 토양(2)의 제염율이 약간 높은 것으로 보인다. 이는 토양(1)과 토양(2)의 양의 차이에 기인한 것으로 판단된다. 분리된 토양

의 양의 차이에 의해 무게 차이가 5 ± 1 kg의 차이가 난 반면 세척수의 양은 일정하였기 때문에 제염율의 차이가 발생한 것으로 판단된다.

Fig. 3은 토양 입도에 따른 제염율의 차이를 보여 주고 있다. 그림에서 보는 바와 같이 일반적으로 입도가 큰 토양의 제염율이 높음을 확인할 수 있었다. 토양(1)의 제염 결과(B-1) 제염율의 차이가 46%로 가장 크게 나타난 반면 토양(2)의 제염 결과(B-3)가 2%로 입도별 제염율의 차이가 거의 나타나지 않았다. 이 경우는 제염제의 양과 시간이 적어 제염율에 영향을 미친 것으로 판단된다. 본 실험을 통해서 토양의 입도가 큰 경우가 그렇지 않은 경우에 비해 제염율이 더 좋아진다는 것을 확인할 수 있었으며 이는 굵은 토양에 붙어있던 미세입자들이 물에 씻겨 나감으로서 방사능이 저감된 것으로 판단된다. 따라서 토양오염은 주로 굵은 토양보다는 미세한 입자가 더 많이 오염되어 있으며 제염 대상 토양의 입도분포가 전체 제염율에 많은 영향을 주고 있음을 알 수 있다. 이는 Hanford Site의 오염토양 제염을 위한 DOE의 토양세척법을 이용한 제염장치의 실증실험 결과와도 잘 일치한다. 이 실험에서 토양은 2mm 이상, 2~0.25mm, 0.25mm 이하로 세분화되었으며 입도가 작을수록 방사능 농도는 높았으며 제염율은 입도가 큰 경우가 좋았다[8].

Fig. 4는 세척수 부피와 토양질량의 비에 따른 제

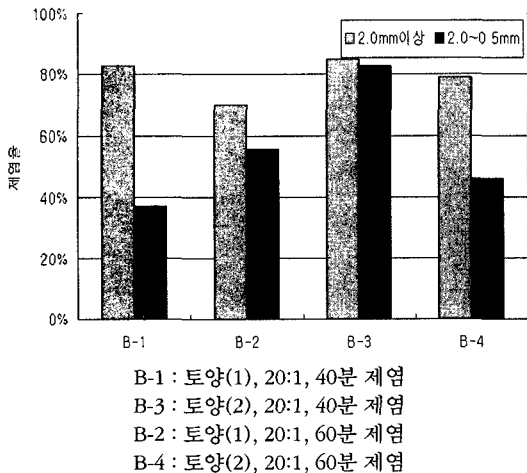


Fig. 3. Decontamination Rate According to Particle Size.

염율의 차이를 보여주고 있다. 토양(1)과 토양(2)의 입도 2.0~0.5 mm 토양을 제염한 결과 제염수의 양을 두 배로 하더라도 제염율의 차이는 미미하였다. 이는 제염수의 양을 토양의 무게비로 20배 사용하였을 경우 씻겨나갈 수 있는 미세입자는 거의 다 씻겨 나간 것으로 판단되며 더 높은 제염율을 얻으려면 20:1로 제염을 반복하는 것이 더 효과적인 것으로 판단된다.

Fig. 5는 제염시간에 따른 제염율의 차이를 보여주고 있다. 결과를 보면 토양 제염을 40분 했을 때와 60분했을 때의 제염율은 대체적으로 큰 차이가 나지

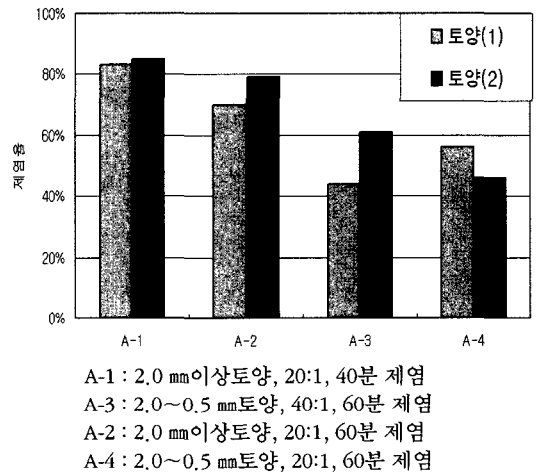


Fig 2. Decontamination Rate According to Radiation Level.

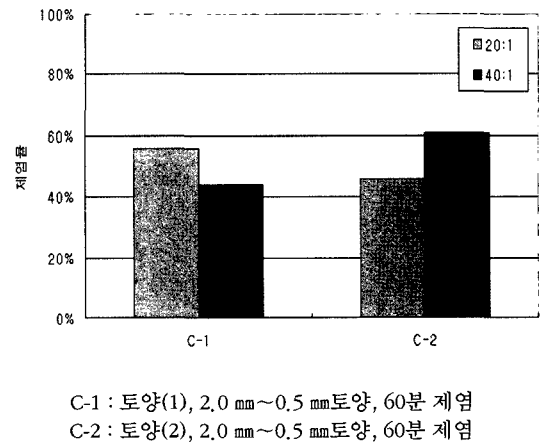


Fig. 4. Decontamination Rate According to the Ratio of Agent to Soil.

않았으며 토양(1)에서는 제염시간을 늘리더라도 그 효과가 크지 않음을 보여준다.

오염토양 제염시 반복제염으로 어느 정도의 제염 효과를 얻을 수 있는지 알아보기 위하여 제염했던 토양을 이용하여 반복제염 실험을 수행하였다. 제염 실험은 제염했던 토양을 이용하여 실험하였으며 토양(2) 중에서 2.0 mm 이상, 2.0~0.5 mm 토양을 선택하여 실험하였다. 실험조건은 처음 실험했던 조건과 같도록 설정하였으며, 제염제와 토양의 비는 20:1, 제염시간은 60분으로 하였다. Fig. 6과 같이 1차 제염했을 경우는 입자가 굵은 토양에서 제염율이 높게 나타났으나 2차 제염시에는 입자가 비교적 작은 토양에서 제염율이 조금 더 높게 나타났다. 입도가 큰 오염토양의 경우는 1차제염으로 충분히 오염입자가 떨어져 나갔기 때문에 추가로 제염을 하여도 뚜렷한 제염효과의 향상을 볼 수 없었다. 입자가 작은 토양은 1번 제염으로는 원하는 만큼의 제염율을 얻을 수 없지만 2번 제염할 경우 80%이상의 제염율을 얻을 수 있는 것으로 나타났다. 초기에 충분히 제염된 토양은 반복제염을 하여도 큰 효과를 볼 수 없지만 오염이 많이 되거나 미세입자는 초기 제염이 부족할 경우 반복 제염을 수행함으로써 제염율의 향상을 볼 수 있는 것으로 판단된다.

제염후 잔존 방사능량은 자체처분시 선량평가에 중요한 인자가 된다. 목표 잔존 방사능량은 자체처

분 대상 토양의 양에 따라 변할 수 있다. 제염 토양의 잔존 방사능을 가지고 자체처분시 선량을 평가하였다[7]. 평가 결과를 보면 방사능 농도가 낮은 흙은 1회 제염으로도 충분하며, 방사능 농도가 다소 높을 경우 2회정도 세척하면 충분한 것으로 판단 되었다.

IV. 결 론

원전의 정상운전이나 해체시 발생될 수 있는 토양의 제염을 위한 토양제염장치를 개발하였다. 제염공정 개발을 위해 우선 현재 사용되고 있는 토양 제염공정을 분석하여 토양의 입도분리, 물을 이용한 토양세척, 제염폐액 재순환 등 3개 주요 공정으로 이루어진 제염공정을 결정하였다. 제염장치 설계용 데이터를 획득하기 위해 고리2발전소에 임시보관 중인 토양에 대한 정량 및 정성분석을 수행하였으며, 토양을 환경기술원으로 운송해서 실험실 규모의 입도분리, 제염제 선정, 제염제 온도, 제염제 양, 입도별 제염율 등의 실험을 수행하여 제염장치를 제작하였다. 입도분리장치를 이용하여 우선 토양을 선별하였는데 0.5mm 이하의 미세 토양은 약 30%를 차지하였다. 이결과는 오염준위가 낮은 토양의 경우 입도분리만으로도 30%의 미세토양만 드럼화하여 처분하고 나머지는 제염공정을 거쳐 재활용하거나 자체처분 가능하다는 것을 보여준다. 제염장치를 이용한 제염

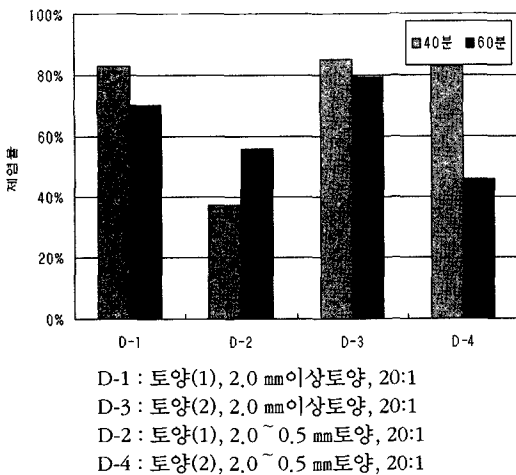


Fig. 5. Decontamination Rate According to Decontamination Time.

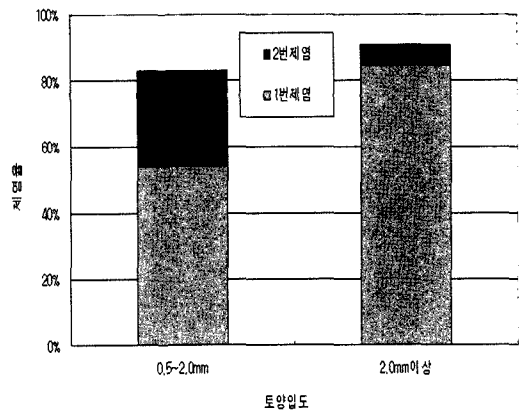


Fig. 6. Decontamination Rate of Re-decontamination.

실험을 종합해본 결과 적용된 모든 제염조건에 대해 80% 이상의 제염율을 얻을 수 있었다. 방사능 준위 및 토양입도에 의한 실험결과를 보면 토양(1) 및 고입도의 제염율이 다소 높음을 알 수 있었다. 제염용액과 토양질량의 비에 따른 제염율을 보면 제염제 부피를 두배로 높였을 경우 토양(2)의 제염율에는 큰 영향을 미쳤지만 토양(1)에는 큰 영향을 미치지 못했다. 반복 제염은 2.0mm 이상의 고입도 토양보다는 0.5~2.0mm의 다소 작은 입자에 더욱 효과적으로, 제염이 어려운 작은 입자의 반복제염시 방사능 저감 효과가 비교적 크게 나타났다. 이는 반복제염을 하게 되면 세척조안에서 토양이 서로 부딪히는 시간이 그만큼 길어지며 깨끗한 세척수로 다시 제염되기 때문으로 생각된다. 초기 제염으로 제염효율은 약 54~85%에 이르고 반복제염실험을 한 결과 이 때의 제염율은 83~91%정도에 이른 것으로 나타났다.

본 오염토양 제염장치를 활용하면 원전에서 발생되는 오염토양의 방사능 농도를 줄일 뿐 아니라 처분양을 줄여 저장공간의 확보에 기여할 뿐만 아니라 향후 원전의 해체시에도 유용하게 활용될 수 있으리라 생각된다.

V. 참고 문헌

1. EPA. Technology Screening Guide for Radioactively Contaminated Site, EPA402-R-96-017(1996)
2. Jungkwon Son, Kidoo Kang et al, "Experiment for Decision of Operating Conditions for Soil Washing Decontamination Process," Proc. of International Symposium on Radiation Safety Management, pp. 458~466, Nov. 5~7, 2003, Daejeon
3. John E. Van Benschoten, Mark R. Matsumoto and William H. Young. "Evaluation and Analysis of Soil Washing for Seven Lead-Contaminated Soil," Journal of Environmental Engineering, pp. 217~224(1997)
4. Allen P. Davis and Inderbir Singh, "Washing of Zinc(II) from Contaminated Soil Column," Journal of Environmental Engineering, pp. 174~185(1992)
5. Klaus Fischer, Hans-Peter Bipp, et.al, "Utilization of Biomass Residues for the Remediation of Metal-Polluted Soils," Environ. Sci. Technol., pp2154~2161(1998)
6. 신상운, 강기두, 손중권, 김학수, 최영조. 토양 환경방사능 관리기술 개발
TM.A01NS19.M2003.5(2003)
7. 김경덕, 강기두, 손중권, 김학수, 박경록. 토양 환경방사능 관리기술 개발
TR.A01NS19.M2004.7(2004)
8. DOE, Soil Washing Pilot Plant Treatability Test for the 100-DR-1 Operable Unit. DOE/RL-95-46(1995)