

## Soil Washing에 의한 방사성오염 토양 제염 방안 연구

김 계 남 · 원 휘 준 · 오 원 진

한국원자력연구소 방사성폐기물제염기술개발팀

kimsum@kaeri.re.kr

### 요 약 문

A fraction of TRIGA contaminated soil whose decontamination is practicable by soil washing was about 34.2 %. It appeared from results of first decontamination experiment that decontamination efficiency using  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ,  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ , and NaOH solution were high. Meanwhile, the most suitable ratio of contaminated soil mass(g) to decontamination solution volume(ml) appeared to be 1:10 according to experiment results. And the most suitable concentration of oxalic acid used as a decontamination solution appeared to be 0.5 M.

**Key Words** : Contaminated soil, Washing washing, Decontamination solution

### 1. 서 론

한국원자력 연구소의 방사성폐기물 저장고에는 서울 TRIGA 연구용 원자로를 수 십년 동안 가동 중에 원자로 주변부지에서 발생한 방사성 오염토양 약 4500드럼을 보관하고 있다. 한국원자력연구소 방사성폐기물 저장고는 약 10,000 드럼의 방사성폐기물을 보관할 수 있는 용량인 데 현재 거의 90% 이상의 폐기물 드럼이 채워져 있어 앞으로 몇 년 내에 저장 포화상태에 도달하므로 처리 가능한 토양방사성 폐기물을 제염하여 저장공간을 확보해야 할 형편에 있다.

본 연구에서는 TRIGA 원자로 주변의 오염토양을 대상으로 토양세척법을 이용한 제염방안을 연구했다. TRIGA 오염토양의 방사능농도를 측정하고 오염토양의 물리화학적 특성을 분석했다. 토양내의 세슘과 코발트를 최대한 제거하기 위해 여러 가지 제염용액을 사용하여 세척시킨 후 제염효율을 비교분석했다. 또한 제염효율을 높이기 위해 반복세척시험을 수행하여 제염효율을 높이고 제염폐액의 부피를 최소화시킬 수 있는 반복제염횟수를 결정했다. 한편 토양제염시 발생한 방대한 제염폐액의 부피를 제거하기 위해 이온교환법에 의한 재생방법의 가능성을 검토했다.

### 2. 실험방법

한국원자력연구소에 보관중인 TRIGA 오염토양 4500 여 개의 드럼들 중 토양폐기물드럼의 표면선량별로 5드럼씩 총 15개 드럼을 선정하여 각각의 드럼에서 10 Kg 씩 시료를 채취하고, 각 채취된 시료는 실온에서 1주일 이상 건조시켰다. 건조한 토양시료는 국내 안진 기계산업에서 제조한 ABTS-200 Sieve-Shaker와 1mm 및 0.063mm Sieve를 사용하여 약 30분 동안 체분리하여 오염토양을 0.063mm이하, 0.063-1.0mm, 1.0mm이상으로 분류했다. 방사능농도의 재현성과 외부기관 의뢰에 의한 시간절감을 위해 본 연구실에서 보유한MCA를 Up-grade하여 자체적으로 방사능 농도를 분석하였다. Energy 및 Efficiency Calibration을 위해 한국표준연구소에서 제공한 표준시료인 QCY48(Amersham)을 사용하였다. 분석가능한 핵종은 Am-241, Cd-109,

C057, Ce-139, Hg-203, Sn-203, Sr-85, Cs-137, Y-88, C0-60이다. 15개 토양폐기물드럼에서 채취한 토양시료에 대해 각 토양시료를 3종류로 입도 분류하여 총 45개의 방사성토양시료로 분류하고 각 시료를 MCA를 사용하여 0.1Bq의 민감도로써 측정하였다. 또한 TRIGA 오염토양내의 방사능농도 정도를 분석하기 위해 필요한 분석시간을 산정했다.

Table 1. 토양폐기물의 입도별부피 및 Co, Cs의 방사능농도

토양드럼 표면선량	입자크기	평균부피(%)	Co-60(Bq/kg)	Cs-137(Bq/kg)
0.05mR/h이상 (7%)	1.0mm이상	28.3	39-234	2-886
	0.063-1.0mm	61.2	155-1661	16-8239
	0.063mm이하	10.5	481-6645	47-19547
0.02-0.05mR/h (60%)	1.0mm이상	48.5	3-24	1-85
	0.063-1.0mm	46.5	6-326	14-545
	0.063mm이하	5.0	31-534	288-1664
0.02mR/h이하 (33%)	1.0mm이상	52.4	5-15	3-47
	0.063-1.0mm	43.1	14-69	25-124
	0.063mm이하	4.5	56-205	86-377

### 3. 실험결과 및 고찰

본 연구실에서 보유한 MCA를 Up-grade하여 토양 방사능 농도를 분석한 결과는 Table 1과 같다. 주요 오염 방사성핵종은 제한 방사능 농도(약 400 Bq/kg) 보다 높게 오염되어 있는 Cs-137과 C0-60이다. 주로 Soil Washing으로 제염 가능한 토양은 드럼표면선량 0.02-0.05mR/h 인 토양 중 입경이 0.063-1.0mm 토양과 토양드럼표면선량 0.05mR/h이상인 토양 중 입경이 0.063mm 이상인 토양(전체 34.2%)이다. 또한 TRIGA 방사능오염토양을 MCA로 계측할 때 필요한 측정시간은 약 8시간으로 나타났다.

위와 같이 입경 0.063-1.0mm의 방사능 오염토양을 H<sub>2</sub>O, Citric Acid, NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>, FeCl<sub>3</sub>, (COOK)<sub>2</sub>H<sub>2</sub>O, (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>.H<sub>2</sub>O, NaOH, Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 용액 등으로 1차 제염 실험을 수행한 결과 Fig.1과 같이 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>.H<sub>2</sub>O, NaOH용액에 의한 제염효율이 높게 나타났다. 특히 H<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>.H<sub>2</sub>O(Oxalic acid)용액으로 제염시 코발트 제거효율이 매우 높고 세슘 제거율도 비교적 높은 것으로 나타났다. Oxalic acid은 생분해 가능하며, 비교적 가격이 싼 편이며 상당히 안정한 금속 콤플렉스를 형성하며 수산화물을 용해시킨다. 토양 드럼 표면선량 0.05 mR/hr 이상의 방사능 오염토양 중 입경 0.063-1.0mm 토양을 대상으로 최적 오염토양 질량(g) 대 제염용액 부피(ml)의 비율 및 최적 제염용액 M 수를 결정하기 위한 실험을 수행했다. Soil Washing 시킨 결과 제염효율은 Fig.2와 같이 오염토양 질량 대 제염용액 부피의 비율을 1:10로 하였을 때 1:7.5로 하였을 때 보다 Cs제거효율이 10%이상 높게 나타났다. 그러므로 비록 제염용액이 많이 들지라도 제염효율을 높이기 위해 1:10비율이 적합한 것으로 판단된다. 또한 최적 제염용액 M수로는 0.5 M이 적합한 것으로 나타났다. 비록 1.0M 옥살산 사용 시 제염효율이 Cs의 경우 3% 정도 높지만 제염용액 처리 및 경제성을 감안 할 때 0.5M이 적합한 것으로 사료된다. 그러나 1회의 Scrubbing제염 의한 제염효율은 낮은 편이므로 최적 제염용액 M수의 결정은 반복제염 실험 수행하고 각각의 M에 대한 최종 제염효율을 분석한 후 결정하는 것이 바람직하다.

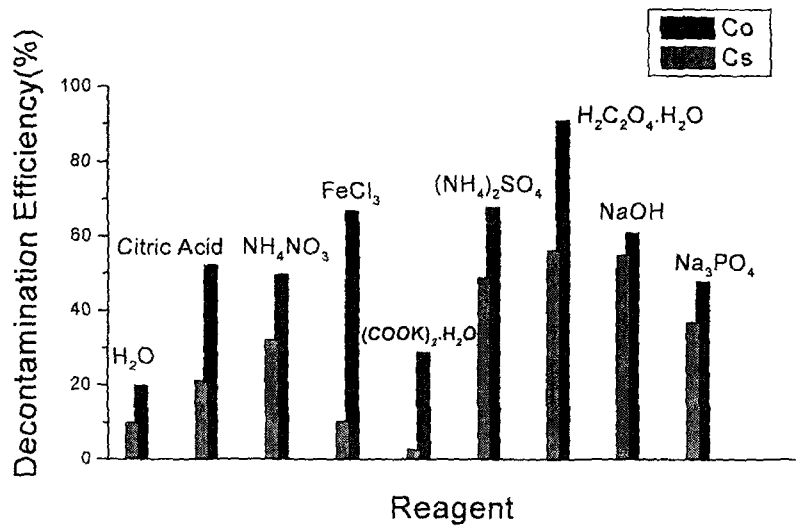


Fig. 1. Soil decontamination efficiency versus reagent

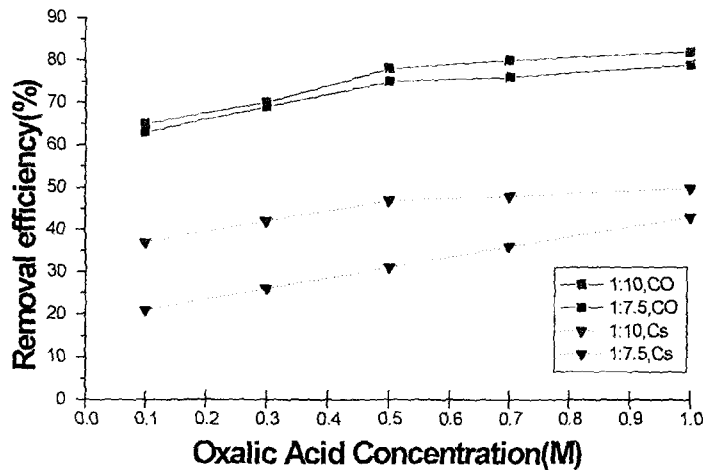


Fig.2. Radionuclides removal efficiency versus mole and soil to oxalic acid ratio

#### 4. 결론

TRIGA 오염토양을 대상으로 방사능오염 농도 측정을 수행해 본 결과 전체 오염토양 중 Soil Washing으로 제염 가능한 토양은 약 34.2%이다. 1차 제염 실험을 수행한 결과 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>.H<sub>2</sub>O, NaOH용액에 의한 제염효율이 높게 나타났다. 제염효율을 높이기 위해 최적 오염토양 질량(g) 대 제염용액 부피(ml)의 비율은 1:10이 적합한 것으로 판단된다. 또한 최적 제염용액 M수로는 0.5 M이 적합한 것으로 나타났다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.