

울진원전 근해 해저 퇴적물의 구성성분 및 방사성 Cs 흡착 특성

김영규^{1*} · 김경미¹ · 정희진¹ · 강희동² · 김완² · 도시홍³ · 김도성⁴

¹경북대학교 지질학과, ²경북대학교 물리학과, ³부경대학교 물리학과, ⁴대구대학교 과학교육학부

Characteristics of Sediment Compositions and Cs Adsorption on Marine Sediment near Wuljin Nuclear Powerplant

Yeongkyoo Kim^{1*}, Kyung-Mi Kim¹, Hee-Jin Jung¹, Hee-Dong Kang², Wan Kim², Si-Hong Doh³, and Do-Sung Kim⁴

¹Department of Geology, Kyungpook National University, Daegu 702-701, Korea

²Department of Physics, Kyungpook National University, Daegu 702-701, Korea

³Department of Physics, Pukoung National University, Busan 608-737, Korea

⁴Division of Science Education, Daegu University, Daegu 712-714, Korea

Mineralogical composition, ¹³⁷Cs activity, total organic carbon (TOC), and particle size of marine sediments near Wuljin Nuclear Powerplant were analyzed and the relationships among those components were investigated. The particle sizes of sediments were equivalent to sand size and in the range of -0.48~3.6 M ϕ . TOC contents and ¹³⁷Cs activities were in the range of 0.06~1.75% and minimum detectable activity (MDA) ~4.0 Bq/kg-dry with the average value of 1.15 \pm 0.62 Bq/kg-dry, respectively. The sediments in study area were characterized by large particle size and small TOC contents, and ¹³⁷Cs activity compared with other marine sediments. The main mineral components were quartz and feldspar (albite, microcline, and small amount of orthoclase) with small amount of pyroxene, calcite, hornblende. Minerals with 10 Å XRD peak (mainly biotite) and chlorite were also identified. Among those minerals, biotite shows the linear relationship with ¹³⁷Cs content probably due to the frayed edge site (FES) on biotite or small amount of mixed illite. However, TOC content shows most linear relationship with ¹³⁷Cs content because no significant amount of clay minerals, which can adsorb significant amount of Cs, were observed in the study area, indicating that the distribution of ¹³⁷Cs in this study area was more significantly affected by the TOC content than mineral composition.

Key words: marine sediment, mineral composition, ¹³⁷Cs, TOC, particle size

울진원자력 발전소 인근 해역의 해저 퇴적물에 대하여 광물분석과 함께 ¹³⁷Cs의 농도를 분석하였고 이와 더불어 총 유기탄소(total organic carbon, TOC)의 양과 퇴적물의 입자 크기를 분석하여 퇴적물의 특성과 더불어 이들의 상관관계에 대하여 알아보았다. 퇴적물의 입자 크기는 주로 모래크기에 해당되며 -0.48~3.6 M ϕ 의 분포를 보인다. TOC와 ¹³⁷Cs의 경우 각각 0.06~1.75%와 최소검출활동도(Minimum detectable activity, MDA)~4.0 Bq/kg-dry의 범위로 나타나며 평균 방사능의 농도는 1.15 \pm 0.62 Bq/kg-dry였다. 일반적으로 다른 해역의 경우보다 큰 입자와 작은 TOC의 양과 ¹³⁷Cs의 농도가 특징적이다. 본 해역 퇴적물의 구성 광물은 주로 석영과 장석류들(알바이트, 미사장석, 그리고 약간의 정장석)로 구성되어 있으며 미량의 휘석, 방해석, 각섬석 등의 조암광물들과 함께 10 Å의 피크를 갖는 광물(주로 흑운모)과 일부 녹니석등의 광물들이 혼재해 분포하고 있는 것으로 나타났다. 이들 광물 중 흑운모가 가장 대표적으로 ¹³⁷Cs의 분포와 상관관계를 보이고 있으며 이는 흑운모의 풍화에 따른 닳은 모서리 자리(frayed edge site, FES)나 시료에 혼재되어 존재할 가능성이 있는 일라이트 등에 의한 결과로 판단된다. 여러 가지 퇴적물의 특성 중 ¹³⁷Cs의 분포와 가장 밀접한 양상을 보이는 것은 TOC의 농도로 이것은 본 해역에서 Cs를 강하게 흡착할 만한 광물이 존재하기 않기 때문이며, 따라서 ¹³⁷Cs의 분포는 광물분포 보다는 TOC의 함량에 더 큰 영향을 받고 있음을 보여준다.

주요어 : 해양 퇴적물, 광물조성, ¹³⁷Cs, TOC, 입자 크기

*Corresponding author: yskim@knu.ac.kr

1. 서 론

여러 가지 방사성 핵종들 중 ^{137}Cs 의 경우 용해도가 아주 높아 일반적 핵폐기물의 처리에 있어서 주의를 요하는 중요한 원소중의 하나이다. 특히 ^{137}Cs 의 경우 반감기가 긴 편이며(30.2년) 과거 핵실험 및 체르노빌 원자력발전소의 사고로 인하여도 많은 양이 대기 및 지질 환경에 누출되었고 아직도 그 영향이 계속되고 있다. Cs의 경우 또한 K와 화학적으로 비슷한 성질을 갖고 있어 생물체에도 쉽게 흡수가 된다(Kerpen, 1986). 따라서 지질학적 환경에 유입된 Cs의 경우 지각을 구성하는 다양한 물질들과 반응을 하며 이들의 반응은 Cs를 비롯한 많은 방사성 핵종의 최종적인 거동을 결정하고 이를 통한 생물체에 대한 유해성에 지대한 영향을 미친다고 할 수 있다.

다양한 광물들이 이러한 Cs를 고정하는데 중요하다고 알려져 있다(Sawhney, 1970, 1972; Francis and Brinkeley, 1976; Staunton and Roubaud, 1997; Poinssot *et al.*, 1999). 광물 중에서 점토광물이 이러한 역할을 하는데 있어서 중요하며, 특히 점토광물 중에서도 일라이트는 Cs를 선택적으로 흡착하는 것으로 알려져 있다. Tamura and Jacobs(1960)에 의한 연구로부터 많은 실험적 연구들이 Cs과 일라이트의 흡착관계를 설명하기 위하여 시도되어졌다(Sawhney, 1970, 1972; Eberl, 1980; Brouwer *et al.*, 1983; De Preter, 1990; Commans *et al.*, 1991; Staunton and Roubaud, 1997; Poinssot, *et al.*, 1999; Bradbury and Baeyens, 2000). 여러 실험 결과에 의하면 Cs는 점토광물 중에서 질석, 운모, 일라이트 등에 강하게 흡착됨을 보여주고 있다. 또한 실제로 야외의 퇴적물에서도 일라이트가 많은 퇴적물에 특히 이러한 Cs이 많이 흡착됨을 보여준다(Francis and Brinkeley, 1976). 이러한 일라이트에 대한 Cs의 강한 흡착은 일라이트의 구조와 밀접한 연관이 있는데 적은 양이지만 흡착이 아주 강하게 일어나는 자리와 많은 양으로 흡착되지만 약하게 흡착되는 두 개의 흡착장소가 일라이트내에 존재하는 것으로 일반적으로 보고되고 있다(Sawhney, 1972; Poinssot *et al.*, 1999). 전자의 경우 일반적으로 닳은 모서리 자리(frayed edge site, FES)라고 일반적으로 불리며 이러한 흡착장소는 일반적으로 풍화 등의 과정에 의하여 일라이트의 모서리 끝에 있는 K 이온이 빠져나가서 생긴 자리이다. 이 자리는 Cs이나 Rb 그리고 NH_4 등과 같은 수화 에너지가 적은 이온들이 특이 비가역적으로 강하게 흡착되는 자리로 알려져 있다. 후자의 경우는 주로 일라이트 결정의 위

아래의 평면장소(planar site)로 알려져 있다. 또한 토양에 많은 양이 존재하는 유기물도 이러한 Cs의 흡착에 있어서 중요한 역할을 하는 것으로 알려져 있다. 그러나 유기물의 경우 일라이트와 달리 가역적인 흡착(물리적 흡착)으로 일라이트보다는 흡착의 강도가 낮은 것으로 알려져 있다(Rigol *et al.*, 2002). 기존의 연구들은 일반적으로 토양내의 유기물이 ^{137}Cs 의 농도와 아주 밀접하게 연관되어 있음을 보여주고 있다(Nikolova *et al.*, 2000; Lee and Lee, 2000). Takenaka *et al.* (1998)은 숲을 이루고 있는 토양에서 탄소의 양과 ^{137}Cs 의 양과 밀접한 관계가 있다고 보고하기도 하였다. 이렇게 토양의 구성 성분과 Cs의 흡착 관계를 밝히기 위하여 많은 실험실 연구도 수행되었는데 이러한 실험실 연구는 대부분 순수한 한두 물질의 Cs 흡착 특성, 또는 이들 물질과의 경쟁관계에 대한 연구가 대부분이다. Dumat and Staunton(1999)과 Dumat *et al.* (2000)은 실험을 통하여 유기물이나 유기복합체들이 일라이트나 몬모릴로라리트에 Cs이 흡착되는 것을 방해한다고 보고하였다. 그러나 실제 토양의 경우 한 두가지의 성분으로만 구성된 것이 아니라 다양한 광물과 유기물 등으로 이루어진 복잡한 물질이다. 육지의 경우 토양에 대한 ^{137}Cs 의 흡착에 있어 다양한 환경에 의하여 그 영향이 달라질 수 있다. 예로서 수리지질학적 특성이나, 강우, 기후, 지형 등에 의하여 같은 토양이라도 흡착된 ^{137}Cs 의 양이 달라질 수 있다. 그러나 해양 경우 일부 편차는 있지만 해수내의 ^{137}Cs 의 경우 일정한 농도를 유지하고 있다(Hong *et al.*, 1999; Baskaran *et al.*, 2000; Johnson-Pyrtle, 2000; Johnson-Pyrtle and Scott 2001). 따라서 해양 퇴적물의 경우 균일한 성분의 해수와 평형을 이루고 있기 때문에 육지에서와 같은 영향은 최소화가 되고 대부분의 Cs과의 반응은 퇴적물을 이루고 있는 기질의 성분과 밀접한 연관을 이루고 있다.

지표에서 퇴적물내의 광물들은 이온의 용출, 외부 이온의 침전, 흡착, 이온교환 반응 등을 포함하여 유기물과 함께 양이온들의 분산 및 재분배에 결정적 역할을 하게된다(Comans *et al.*, 1991). 그러나 실제 자연환경, 특히 해저 퇴적물의 경우 다양한 광물과 유기물 등 다양한 성분들이 공존하므로 이러한 반응들은 좀더 복잡해질 수밖에 없다.

본 연구에서는 울진 원자력 발전소 인근의 해저 퇴적물에 대하여 ^{137}Cs 의 농도를 측정하고 이들과 퇴적물들의 구성 성분과의 관계를 밝혀 해양에 유입된 방사성 Cs의 거동 특성을 밝히는 것을 목적으로 하고 있다.

2. 연구방법

2.1. 시료채취

해저 퇴적물 시료 채취를 위하여 데릭(derrick) 기중기와 권양기가 설치된 10톤급 선박을 이용하였다. 시료채취는 울진원전 배수구를 기준으로 1 km 이내는 100 m간격으로 1 km 밖의 해역에서는 500 m 간격으로 시료 채취정점을 정하였다(Fig. 1). 각 정점에서 grab sampler를 이용하여 시료를 채취하고, scoop을 이용하여 표층 5cm 깊이까지 취하였다. 채취된 시료중 89개의 시료를 본 연구에 사용하였다.

2.2. 시료의 전처리

채취된 시료는 실험실로 운반한 후 돌이나 자갈, 조개껍질 등의 이물질을 제거하고 90°C 열풍건조기에서 48시간 동안 건조하였다. 건조된 해저 퇴적물은 건조 중에 덩어리가 된 부분을 다시 부수고 전량을 2 mm mesh의 체를 이용하여 거른 후 충분히 혼합하였다.

2.3. ¹³⁷Cs 농도 측정(감마핵종 방사능 분석)

전처리가 완료된 시료는 고순도 게르마늄(HPGe) 검출기를 이용하여 감마선 분광시스템을 사용하여 감마핵종분석을 실시하였다. 건조분쇄법으로 전처리한 해저토는 Marinelli 비이커에 담아 측정하였다. 감마핵종

분석을 위해 상대 검출효율이 각각 20%, 24%, 30%, 33%, 33%인 5대의 HPGe 감마선 분광기를 사용하였다. 감마선 스펙트럼은 4096 채널로 최대 감마선 에너지를 3 MeV까지 측정하도록 하였으며, 각 핵종에 대한 방사능 검출 하한치를 만족할 수 있도록 측정시간을 조절하였다. 분석용 프로그램은 Aptec (Aptec Co.)을 사용하였으며 방사능이 검출된 핵종에 대해서는 방사능농도와 계측오차(표준편차, 1s)로 나타내고, 방사능이 검출되지 않은 핵종에 대해서는 검출하한치를 나타내었다. 이때 검출하한치는 신뢰구간 95%인 유의 수준 $\alpha=0.05$ 로 평가하였다.

2.4. 입도분석

해저토는 4 mm, 2 mm, 1 mm, 0.5 mm, 0.25 mm, 0.125 mm, 0.063 mm의 표준망목을 통과시켜 조립질 부분을 분리하여 중량비를 구하였다. 그리고 입도가 0.063 mm 이하의 세립질 부분은 입도분석기(Macro-metric, Sedigraph 5100D)로 분석하였다. 분석한 해저토의 입도별 중량비의 누적분포도를 작성하고 중량비가 50%가 되는 중앙값의 입도를 mm 단위로 측정하고 그 역수의 log값으로 입도의 중앙값(Median ϕ , $Md\phi$)을 결정하여 각 해저토 시료의 평균 입도로 나타내었다. 즉 입도 $Md\phi$ 는 $Md\phi = \log_2 \frac{1}{d[mm]}$ 로 쓸 수 있으며, 여기서 d는 mm 단위로 나타낸 입도분포의 중

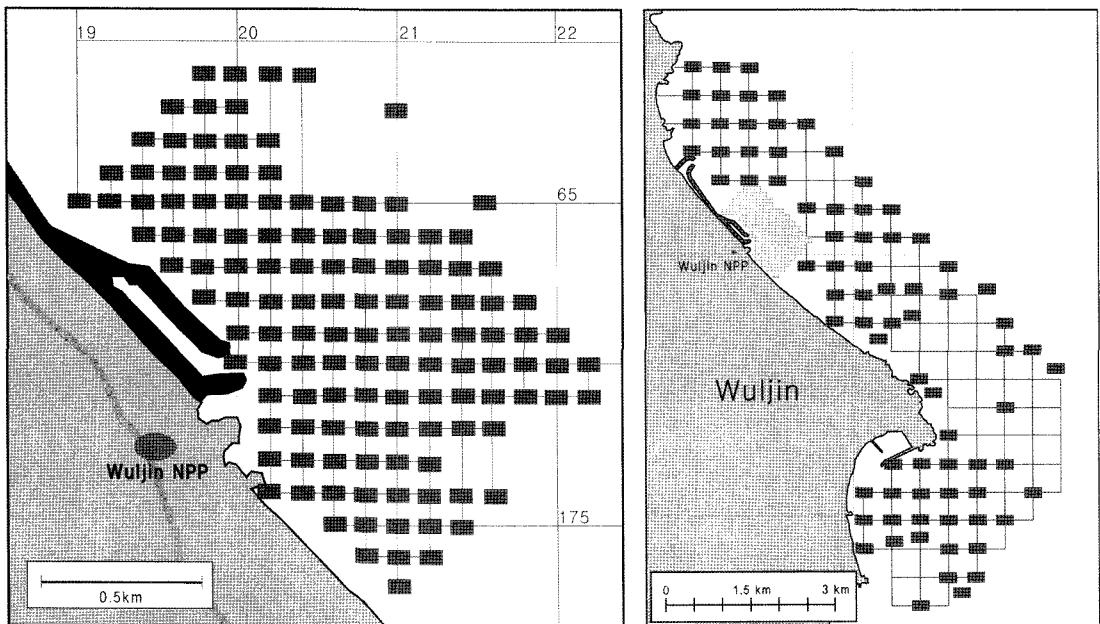


Fig. 1. Sampling sites of marine sediments near Wuljin Nuclear Power Plant(NPP). Left: within 1 km from drain-outlet, Right: out of 1 km from drain-outlet.

양값이다.

2.5. 총 유기탄소(Total Organic Carbon, TOC) 측정

채취한 시료 일부를 초순수로 충분히 세척하여 염분을 제거한 후, 원소분석기(Elemental Analyzer, Vario EL)로 분석하여 총탄소(Total Carbon, TC)를 측정하였다. 이 시료를 고체 TOC 분석기(Shimadzu, SSM 5000A)로 측정하여 무기탄소(Inorganic Carbon, IC)를 측정하였으며, TC와 IC 차이로부터 TOC 함량을 구하였다. 그리고 염분세척시 세척수로 녹아 나올지 모르는 TOC 양을 고려하기 위하여 세척수를 액체 TOC 분석기(Shimadzu 5000A)로 측정하여 TOC와 IC를 각각 구한후, 이를 해저토의 TOC 함량에 더하여 보강하였다.

2.6. 해저토의 광물분석

해저토를 구성하고 있는 광물들을 동정하고 이들에 대한 정량분석을 하기위하여 X-선 회절분석이 사용되었다. 시료들의 입자들이 비교적 크기 때문에 X-선 회절분석을 실시하기 전 실체 현미경으로 각광물의 개략적인 동정 및 특성파악을 실시하였다. 이러한 특성파악 후 X-선 회절분석을 실시하여 각 광물의 특징적이며 대표적인 피크를 이용하여 광물의 정량분석에 사용하였다(Chung, 1974; Hillier 2000). 각각의 광물들의 회절선에 영향을 주는 요소들로는 광물들에 대한 X-선의 흡수정도, 광물의 결정도, 광물의 화학성분, X-선 회절분석기를 사용하는 조건(예, 슬릿, 스캔 속도나 전압 등)에 따라서 각각의 피크에 대한 강도가 달라지므로 정량분석을 위해서는 표준시료가 필요하다. 표준시료로는 강옥을 이용하였고 분석하고자 하는 시료를 1:1로 섞은 후 강옥의 (113)피크와 분석하고자 하는 시료의 특정 피크의 상대적 강도(RIR, relative intensity ratio)를 다음의 식을 이용하여 구한다.

$$RIP_{i,s} = \left[\frac{X_s}{X_i} \right] \left[\frac{I_{(hkl)_i}}{I_{(hkl)_s}} \right] \left[\frac{I_{(hkl)_s}^0}{I_{(hkl)_i}^0} \right]$$

[X: 무게비, I: 강도 (I⁰: 상대강도), i,s: 광물i, 표준시료j]

이러한 RIR값을 기초로하여 광물함량을 모르는 시료에 대하여 일정량의 강옥을 섞은 후 다음 식을 이용하여 각 광물의 피크로부터 광물의 함량을 계산하였다.

$$X_i = \left[\frac{X_{cor}}{RIR_{cor}} \right] \left[\frac{I_{(hkl)_i}}{I_{(113)_{cor}}} \right]$$

본 실험을 위하여 석영의 경우는 3.34 Å, 알바이트

시장석은 3.19 Å, 방해석은 3.03 Å, 흑운모는 9.98 Å등을 사용하였다. 정확한 감정을 위하여 석영, 미사장석, 알바이트, 그리고 시료가 바다에서 채취되었기에 일부 건조 시료는 염분을 함유하고 있고 이의 함유량을 알기 위하여 NaCl 등과 같은 가장 많이 본 지역에서 산출되는 광물의 경우 실제 본 실험 조건하에서의 시료와 강옥을 50:50으로 섞어서 RIR 값을 구하여 추가로 사용하였다. X-선 회절분석기는 한국기초과학지원연구원 대구센터의 Phillips X-선회절분석기를 사용하였으며 분석 조건은 5° 2θ부터 50° 2θ까지 step size는 0.02° 그리고 step당 시간은 1초를 사용하였다. 표준시료로서 강옥을 총시료의 무게에 대하여 30 wt%를 첨가하였다.

3. 결과 및 토의

3.1. 퇴적물의 일반적 물성 및 ¹³⁷Cs 농도

울진원자력 발전소 인근의 해저 퇴적물 분석 결과 여러가지 물리적 특성은 각 지점마다 다양한 것으로 나타났다. 해저토의 입도중앙값(median)은 -0.48~3.6 Mφ의 분포를 보여 준다(Table 1, 값이 작을수록 입자가 큰 것을 의미함). 조사지역의 평균입도는 2.18 Mφ로 해저토를 이루고 있는 기질의 대부분은 입자 크기에 있어서 모래에 해당하며 실트-점토에 해당하는 시료의 비는 매우 낮은 것으로 나타났다. TOC의 경우 0.06~1.75% 사이에 대부분의 값들이 있었고 한 시료만 2 이상의 값(2.42)을 보여주었다(Table 1). 이는 다른 월성 원자력 발전소 인근의 조사 결과(Kim *et al.*, 2006)와 비교하였을 때 입자의 크기는 훨씬 크고 TOC의 값은 훨씬 작은 값을 보여주고 있다. 월성의 경우 입도는 -0.82~7.82의 값을, 그리고 TOC의 경우 0.11~3.29%의 범위 값을 갖는 것으로 보고되었다. ¹³⁷Cs의 경우 최소검출방사능(Minimum detectable activity, MDA)~4.0 Bq/kg-dry의 범위로 나타나며 평균 방사능의 농도는 1.15±0.62 Bq/kg-dry 였다(Table 1). 월성 원전 근해 해저퇴적물의 경우 대체로 <MDA-7.19 Bq/kg-dry로 측정되었으며 Hong *et al.* (1999)은 울릉분지의 표층퇴적물에서 8.3-9.2 Bq/kg-dry를 그리고 Baskaran *et al.* (2000)의 경우 페초라해(Pechora Sea)에 대하여 <MDA-10.4 Bq/kg의 값을 보고하기도 하였다.

3.2. 퇴적물의 광물조성 및 특성

X-선 회절분석결과 연구 지역의 광물들은 대체로 석영과 장석류들(알바이트, 미사장석, 그리고 약간의 정장석, 그리고 미량의 휘석, 방해석, 각섬석 등의 조암

Table 1. Biotite content, ¹³⁷Cs concentration, particle size, and TOC content of sediment samples in the study area.

Sample	Biotite %	¹³⁷ Cs Content	particle size	TOC
uj1	5.1	1.71	2.62	0.24
uj2	4.8	1.23	1.87	0.22
uj3	5.7	1.59	2.99	0.37
uj4	5.2	1.41	2.61	0.16
uj5	6.1	1.67	2.8	0.24
uj6	6.2	1.51	2.72	0.25
uj7	4.7	2.15	3.22	0.5
uj8	5.1	1.59	2.39	0.14
uj9	4.0	0.983	2.47	0.08
uj10	6.9	1.26	2.7	0.18
uj11	6.6	1.61	2.76	0.37
uj12	6.3	2.58	3.44	0.76
uj13	4.4	1.32	2.26	0.12
uj14	1.1	0.445	-0.48	0.06
uj15	2.3	1.1	0.83	0.09
uj16	5.4	2.91	3.31	0.45
uj18	5.8	2.99	3.52	0.9
uj19	2.2	0.447	0.71	0.16
uj20	4.0	2.29	2.45	0.16
uj21	4.9	1.86	3.03	0.36
uj24	7.0	3.86	2.87	1.24
uj29	3.6	1.02	2.19	0.13
uj53	2.9	0.728	1.45	0.12
uj58	4.8	1.33	2.32	0.16
uj63	2.9	0.917	1.48	0.18
uj65	6.0	1.53	2.23	0.33
uj66	4.5	0.887	2.52	0.44
uj67	4.9	1.27	2.69	0.47
uj68	5.4	3.7	3.6	1.36
uj87	5.8	1.09	2.19	0.12
uj91	3.9	1.21	2.44	0.12
uj115	3.4	1.16	1.6	0.17
uj120	4.3	0.854	2.06	0.18
uj125	3.3	0.79	1.98	0.21
uj127	3.7	0.917	2.56	0.23
uj128	4.1	1.07	2.53	0.29
uj129	5.2	2.9	3.51	1.11
uj130	5.3	4	3.28	1.75
uj148	4.1	0.913	2.27	0.12
uj172	3.6	0.887	1.69	0.14
uj175	2.9	0.759	2.14	0.17
uj176	3.0	0.775	2.37	0.1
uj177	2.6	0.774	2.34	0.13
uj180	3.1	2.18	0.99	0.71
uj188	3.6	0.695	1.67	0.06
uj189	3.5	0.807	1.63	0.09
uj190	3.6	0.568	1.81	0.11
uj191	1.5	0.514	2.15	0.78
uj192	3.6	1.17	0.06	0.48

Table 1. Continued.

Sample	Biotite %	¹³⁷ Cs Content	particle size	TOC
uj193	4.4	3.65	3.4	1.52
uj194	3.2	0.942	1.75	0.1
uj195	1.1	0	0.55	0.09
uj196	4.8	0.908	1.99	0.08
uj197	3.1	0.63	1.48	0.08
uj200	2.1	1.61	0.42	0.8
uj201	4.6	1.18	2.31	0.17
uj205	5.3	2.06	2.65	1.02
uj206	4.6	3	3.34	1.4
uj207	3.8	0.965	2.22	0.26
uj212	3.7	3	3.03	1.26
uj213	6.0	1.12	3.04	0.14
uj215	5.9	0.713	-0.37	1.53
uj218	2.2	0.48	1.21	0.11
uj223	6.1	2.23	2.4	0.23
uj224	6.3	1.55	1.96	0.23
uj225	6.4	1.42	2.27	0.35
uj226	7.1	1.23	2.34	0.22
uj227	1.3	0.245	0.62	0.17
uj230	5.0	1.17	2.41	0.19
uj231	4.0	0.918	2.32	0.22
uj232	3.1	0.671	1.65	0.17
uj233	2.7	1.21	2.56	0.55
uj234	5.6	1.47	1.8	0.47
uj236	1.4	0.702	0.67	0.15
uj238	2.5	0.92	1.01	0.17
uj239	4.1	0.596	2.08	0.33
uj240	4.2	0.536	2.16	0.35
uj241	1.5	0.389	0.7	0.28
uj242	5.2	1.49	2.68	0.29
uj243	5.9	1.45	2.72	0.31
uj245	3.1	0.65	1.57	0.13
uj246	6.2	1.54	1.68	0.33
uj247	4.1	1.93	3.14	0.59
uj248	4.6	1.33	2.81	0.25
uj249	6.1	2	3.04	0.47
uj253	8.6	1.99	2.82	0.45
uj254	6.4	1.69	2.71	0.41
uj256	6.7	2.2	2.73	0.42
uj257	5.1	2.07	3.02	0.58

광물들과 함께 10 Å의 피크를 갖는 광물(주로 흑운모)과 일부 녹니석 등의 광물들이 혼재해 분포하고 있는 것으로 나타났다. 10 Å의 피크를 갖는 광물로는 점토 광물 중 일라이트가 가장 대표적이고 비슷한 특성을 갖는 광물로 백운모와 흑운모 등을 들 수 있다. Fig. 2에서 볼 수 있듯이 본 해역의 해저토 구성 광물의 조성은 크게 차이가 나지 않지만 상대적인 함량은 매우

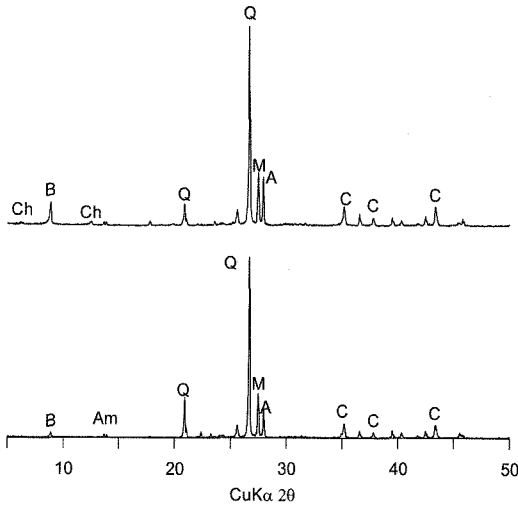


Fig. 2. X-ray diffraction patterns of two representative marine sediment samples. (top) sample uj13, (bottom) sample uj195. Ch: chlorite, B: biotite, Q: quartz, M: microcline, A: albite, Am: amphibole, C: corundum.

큰 차이를 보고 있다. 석영은 약 17~85% 정도의 범위를 갖고 있으며 석영과 함께 많은 양으로 나오는 장석류 들은 알바이트 장석이 2~60%, 미사장석이 2~38%, 정장석은 대부분 1~4%, 그리고 한 시료만이 37%를 보이며 산출되고 있다. 이외에 휘석은 작은 양으로 그리고 각섬석의 경우는 없거나 아주 작은 양으로 나오지만 한 시료에서는 8% 정도의 많은 양이 나오기도 한다. 일부 시료에 아주 적은 양으로 나오기도 있다. 이러한 규산염광물 외에도 많은 시료에서 방해석이 약간 관찰되며 소금(NaCl)은 시료를 건조시킬 때 바닷물의 증발과 함께 형성된 것들이다.

본 해저토를 구성하는 광물들은 일반적으로 암석을 구성하고 있는 조암광물들이 대부분을 이루고 있다. 즉 2차적으로 풍화되어 형성된 점토광물과 같은 광물은 육안이나 실체현미경으로 그리고 X선 회절분석 결과에서도 약간 존재하거나 거의 존재하지 않는 것으로 나타났다. 따라서 연구 지역의 광물들은 기존 육지의 모암이 물리적인 풍화를 받아서 형성된 1차광물들이 주종을 이루고 있고 이것은 월성원전 해역과는 다른 결과이다. 월성원전의 경우 10Å 피크는 주로 점토광물인 일라이트에서 기인된 것이지만 본 지역의 경우 실체현미경 상에서 대부분 흑운모와 약간의 백운모가 발견되는 것으로 미루어 볼 때 10Å의 피크는 주로 흑운모에서 온 것을 알 수 있다(Table 1). 이러한 경향은 일라이트가 시료내 존재할 경우 실제 석영의 양이 작아질수록 화학적 풍화가 진행되어 일라이트의 함량

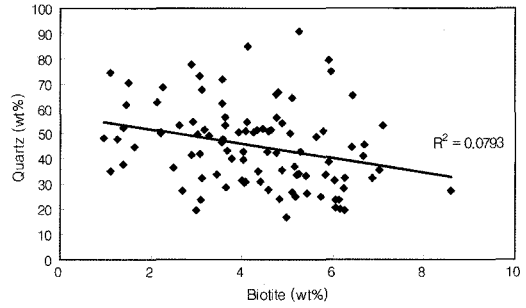


Fig. 3. The relationship between biotite and quartz contents in marine sediments.

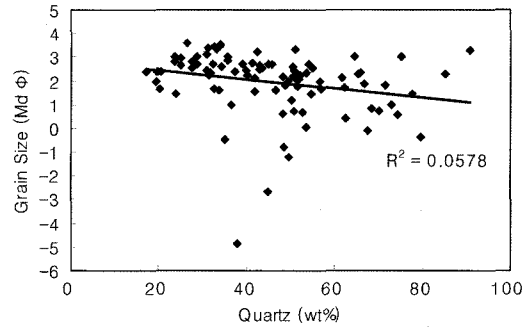


Fig. 4. The relationship between grain size and the contents of quartz in marine sediments.

이 증가하여야 하나(반비례 관계) Fig. 3에서 볼 수 있듯이 두 광물 사이에는 선형관계가 거의 없고 있어도 아주 미약한 것을 알 수 있다. 즉 본 지역의 광물 분포는 화학적 풍화에 의하여 결정되기보다는 물리적 풍화에 의하여, 육지의 모암성분에 좌우되는 것을 알 수 있다. 전체적으로 조암광물들은 육지의 모암들이 물리적 풍화를 거쳐서 입자의 크기가 작아진 것이고 점토 광물들은 화학적인 풍화를 거쳐서 만들어진 것들이 대부분이다. 본 연구지역의 광물입자들의 크기가 큰 점과 더불어 이러한 사실은 육지로부터의 퇴적물 이동이 멀리까지 이동되지 않아 분급이 불량함을 지시하고 있다.

또한 Fig. 4에서 볼 수 있듯이 석영함량과 입도와 비교하여서도 약간의 반비례 관계를 보이나 그 경향은 그리 크지 않음을 알 수 있다. 즉 화학적 풍화가 증가하면 석영의 양은 상대적으로 감소하고 입도가 작은 점토광물이 많이 분포하여야 하나 본 지역은 그러한 경향이 약하다. 이에 비하여 흑운모의 경우는 입도가 작아질수록 함량이 증가하는 것으로 나타나는데 이것은 아마도 일부 풍화산물인 일라이트의 함유에 의한 것이라 판단된다(Fig. 5).

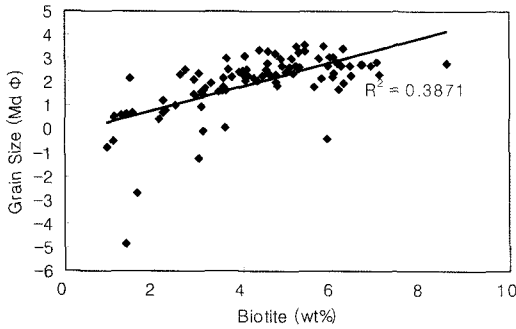


Fig. 5. The relationship between grain size and the contents of biotite in marine sediments.

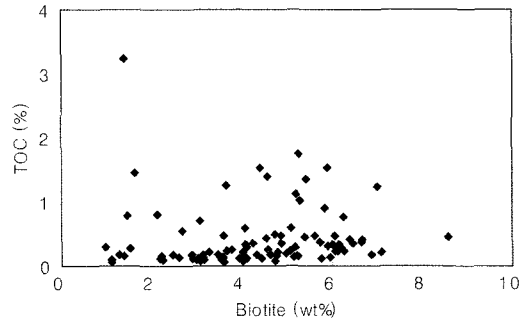


Fig. 6. The relationship between TOC and the contents of biotite in marine sediments.

3.3 ¹³⁷Cs와 광물 및 다른 물리·화학적 특성과의 상관관계

일반적으로 TOC의 경우 점토광물과 상관관계가 높은 것으로 보고되어 있다(Keil *et al.*, 1994). 이러한 관계는 점토광물의 넓은 표면에 유기물들이 흡착되기 때문이다. 본 지역에서 발견되는 광물 중 입도가 작아 질수록 양이 많아지는 광물은 흑운모가 대표적이다. 흑운모의 함량과 TOC 함량과의 관계는 Fig. 6에서 보여지는 것과 같이 TOC 함량이 증가할수록 흑운모 함량이 약간의 증가를 하지만 그러한 경향은 뚜렷하지 않다. 월성 원전 해역의 경우는 일라이트와 TOC 간의 뚜렷한 상관관계가 존재한다. 이는 아마도 유기물과 친화력이 있는 점토광물들이 거의 존재하지 않거나 존재하더라도 미량으로 존재하기 때문으로 판단된다.

Sawhney(1970, 1972)의 연구처럼 ¹³⁷Cs의 경우 점토광물인 일라이트에 스멕타이트나 버미큘라이트와 같은 다른 광물에 비하여 상대적으로 선택적으로 흡착된다고 알려져 있다. 그러나 Fig. 2에서 보듯이 본 지역에서는 대체적으로 10Å피크가 날카로우며 결정도가 좋은 흑운모이기 때문에 일라이트에 의한 선택적인 흡착은 없을 것으로 판단된다. 전체적으로 광물함량과 방사성 원소 ¹³⁷Cs의 함량은 크게 선행관계를 보이지 않고 단지 흑운모의 경우 약간의 선행관계를 보이는 것으로 나타나고 있는데(Fig. 7) 이는 일부 흑운모의 경우 모서리가 풍화되어 풍화된 일라이트의 FES와 같은 효과를 나타내거나 일부 작은 양으로 존재하는 일라이트에 의해서인 것으로 판단된다(Sawhney, 1970, 1972; Staunton and Roubaud, 1997; Poinssot *et al.*, 1999). 전체적으로 본 해역의 광물들은 약간의 녹니석을 제외하고는 일반적인 점토광물은 거의 존재하지 않고 있는데 이러한 것은 광물입자들이 다른 해양퇴적물에 비해

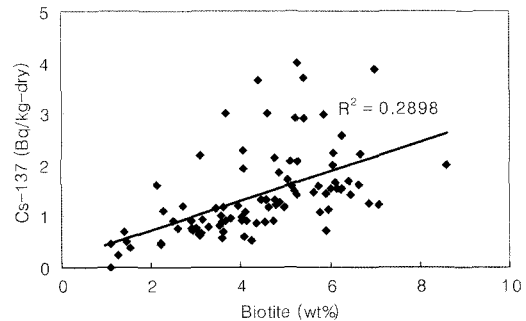


Fig. 7. The relationship between radioactive ¹³⁷Cs activity and the contents of biotite in marine sediments.

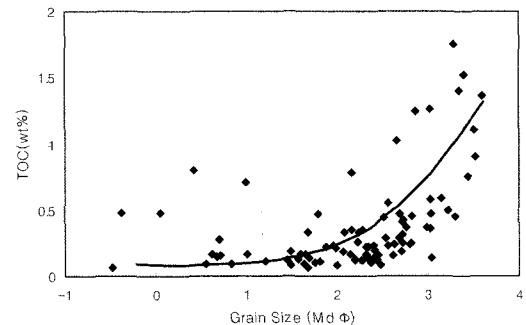


Fig. 8. The relationship between grain size and TOC contents in marine sediments.

여 큰 입자(모래)로 구성되어 있기 때문이며 ¹³⁷Cs의 양이 다른 지역에서 보고된 것보다는 가장 작은 값인 4.0 Bq/kg-dry를 보여주는 것도 큰 입자로 인한 광물의 표면적 감소가 어느 정도 역할을 할 것으로 생각된다(Hong *et al.*, 1999; Baskara *et al.*, 2000). 즉 Fig. 8에서처럼 입자의 크기가 감소할수록 ¹³⁷Cs의 값은 표면적의 증가로 인하여 증가함을 보여주고 있다. 이러한 경향은 특히 입자의 크기가 작아질수록 뚜렷하

여 전체적으로 입자의 크기가 작아질수록 ^{137}Cs 의 증가 기울기가 증가하는 양상을 보인다. 큰 입자는 주로 물리적 풍화에 의하여 형성된 광물들이 주종을 이루고 있기 때문이며 결과적으로 Cs과 친화력이 있는 점토광물들이 아주 작은 양으로 산출되기 때문에 흑운모의 경우를 제외하고는 방사성 Cs과의 상관성은 크게 없는 것으로 나타났다.

Rigol *et al.* (2002)에서 제시된 것처럼 토양의 유기물의 경우 Cs과의 결합력은 적으나 Cs의 흡착에 있어서 중요한 역할을 한다고 알려져 있다. TOC의 경우 퇴적물의 입자가 감소할수록 증가하는 것이 일반적이며 Fig. 9에서처럼 본 지역의 경우 ^{137}Cs 과 입자 크기의 관계처럼 입자의 크기가 감소할수록 TOC의 양은 많아지고 이러한 경향은 특히 입자가 작을수록 더욱 확연하다. 두 그래프간의 유사한 관련성은 입자의 크기가 감소하면서 특히 작은 입자에 TOC가 많이 분포됨을 의미하며 ^{137}Cs 의 경우 이러한 TOC에 추가적으로 많이 흡착됨을 지시한다. 실제 ^{137}Cs 와 TOC의 상관관계를 도시해본 결과 흑운모와 ^{137}Cs 간의 상관관계보다

시료내의 TOC의 양과 ^{137}Cs 의 양의 관계가 더욱 선형관계에 있음을 보여준다(Fig. 10). 결과적으로 점토광물이 별로 없는 본 지역의 경우 ^{137}Cs 의 흡착에 중요한 역할을 하는 것은 광물성분들 보다는 헤저퇴적물 내의 유기물질이 더욱 중요한 역할을 한다고 볼 수 있다(Rigol *et al.*, 2002).

4. 결 론

월성발전소 인근 해역의 헤저 퇴적물의 경우 다양한 물리·화학적 특징을 보인다. 입도의 경우 -0.48~3.6 M ϕ 의 분포를 보이며 주로 모래 크기의 입자로 구성되어 있다. TOC의 경우 대부분 0.06~.75% 사이의 값을 갖고 있었으며 ^{137}Cs 의 경우 최소검출활동도 (Minimum detectable activity, MDA)~4.0 Bq/kg-dry의 범위로 나타나며 평균 방사능의 농도는 1.15 ± 0.62 Bq/kg-dry 였다. 전체적으로 다른 해역의 경우보다 입자의 크기는 크며, TOC의 양과 ^{137}Cs 의 농도의 경우 작은 값을 보여주고 있다. 본 해역 퇴적물의 광물 성분의 경우 대체로 석영과 장석류들(알바이트, 미사장석, 그리고 약간의 정장석)로 구성되어 있으며 그리고 미량의 휘석, 방해석, 각섬석 등의 조암광물들과 함께 10 Å의 피크를 갖는 광물(주로 흑운모)과 일부 녹니석(chlorite)등의 광물들이 혼재해 분포하고 있는 것으로 나타났다. 이들 광물 중 ^{137}Cs 의 분포와 가장 밀접하게 나타나는 광물은 흑운모로서 일반적인 일라이트와의 상관관계보다는 작지만 흑운모의 풍화에 따른 FES나 일부 포함되어 있는 일라이트 등에 의한 결과로 판단된다. 그러나 ^{137}Cs 의 분포 양상은 광물분포 보다는 TOC의 함량에 더 큰 영향을 받고 있는 것으로 나타났다.

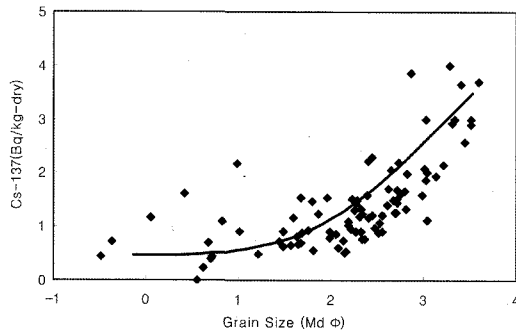


Fig. 9. The relationship between grain size and radioactive ^{137}Cs activity in marine sediments.

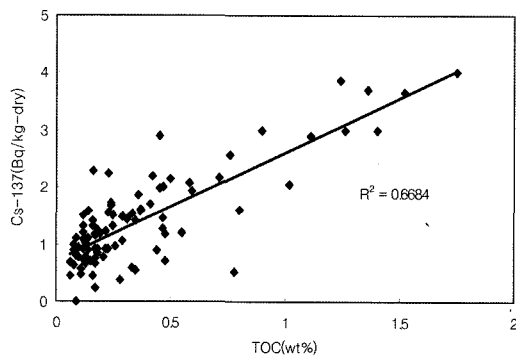


Fig. 10. The relationship between TOC and radioactive ^{137}Cs activity in marine sediments.

사 사

본 연구는 한국수력원자력주식회사와 정부(교육인적자원부)의 재원으로 한국학술진흥재단(R05-2004-000-11398-0)의 지원을 받아 수행된 연구이며 이에 감사드립니다.

참고문헌

- Baskaran, M., Asbill, S., Schwantes, J., Santschi, P., Champ, M.A., Brooks, J.M., Adkinson, D. and Makeyev, V. (2000) Concentrations of ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{210}Pb in sediment samples from the Pechora Sea and biological samples from the Ob, Yenisey Rivers

- and Kara Sea. *Mar. Poll. Bull.*, 40, 830-838.
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B. (2000) A generalised sorption model for the concentration dependent uptake of caesium by argillaceous rocks. *J. Contam. Hydrol.*, 42, 141-163.
- Brouwer, E., Baeyens, B., Maes, A. and Cremers, A. (1983) Cesium and rubidium ion equilibria in illite clay. *J. Phys. Chem.*, 87, 1213-1219.
- Chung, F.H. (1974) Quantitative interpretation of X-ray diffraction patterns of mixtures - I. Mztrix flushing method for quantitative multicomponent analysis. *Journal of Applied Crystallography*, 7, 516-531.
- Commans, R.N.J., Haller, M. and de Preter, P. (1991) Kinetics of cesium sorption on illite. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 56, 1157-1164.
- De Preter, P. (1990) Radiocesium retention in the aquatic, terrestrial and urban environment: A quantitative and unifying analysis. Ph.D. dissertation, Univ. Leuven.
- Dumat, C. and Staunton, S. (1999) Reduced adsorption of caesium on clay minerals caused by various humic substances. *J. Environ. Radioactivity*, 46, 187-200.
- Dumat, C., Quiquampoix, H. and Staunton, S. (2000) Adsorption of cesium by synthetic clay-organic matter complexes: Effect of the nature of organic polymers. *Environ. Sci. Technol.*, 34, 2985-2989.
- Eberl, D.D. (1980) Alkali cation selectivity and fixation by clay minerals. *Clays Clay Mineral*, 28, 161-172.
- Francis, C.W. and Brinkeley, F.S. (1976) Preferential adsorption of ^{137}Cs to micaceous minerals in contaminated freshwater sediment. *Nature*, 260, 511-513.
- Hillier, S. (2000) Accurate quantitative analysis of clay and other minerals in sandstones by XRD: comparison of a Rietveld and a reference intensity ratio (RIR) method and the importance of sample preparation. *Clay Minerals*, 35, 291-302.
- Hong, G.H., Lee, S.H., Kim, S.H. and Chung, C.S. (1999) Sedimentary fluxes of ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{210}Pb in the East Sea (Sea of Japan). *Sci. Total Environ.*, 237/238, 225-240.
- Johnson-Pyrtle, A., Scott, M.R., Laing, T.E. and Smol, J.P. (2000) ^{137}Cs distribution and geochemistry of Lena River (Siberia) drainage basin lake sediments. *Sci. Total Environ.*, 255, 145-159.
- Johnson-Pyrtle, A. and Scott, M.R. (2001) Distribution of ^{137}Cs in the Lena River Estuary-Laptev Sea System. *Mar. Poll. Bull.*, 42, 10, 912-926.
- Keil, R.G., Tsamakis, E., Fuh, C.B., Giddings, J.C. and Hedges, J.I. (1994) Mineralogical and textural controls on the organic composition of coastal marine sediments: hydrodynamic separation using SPLITT-fraction. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 58, 879-893.
- Kerpen, W. (1986) Bioavailability of the radionuclides cesium-137, cobalt-60, manganese-54 and strontium-85 in various soils as a function of their soil properties. Methods applied and first results. In *Application of Distribution Coefficients to Radiological Assessment Models* (ed. T.H. Sibley and C. Myttenaere). Elsevier, 322-332.
- Kim, Y., Cho, S., Kang, H.D., Kim, W., Lee, H.R., Doh, S.H., Kim, K., Yun, S.G., Kim, D.S. and Jeong, G.Y. (2006) Radiocesium reaction with illite and organic matter in marine sediment. *Mar. Poll. Bull.*, in press.
- Lee, M.H. and Lee, C.W. (2000) Association of fallout-derived ^{137}Cs , ^{90}Sr and $^{239,240}\text{Pu}$ with natural organic substances in soils. *J. Environ. Radioactivity*, 47, 253-262.
- Nikolova, I., Johanson, K.I. and Clegg, S. (2000) The accumulation of ^{137}Cs in the biological compartment of forest soils. *J. Environ. Radioactivity*, 47, 319-326.
- Poinssot C., Baeyens, B. and Bradbury, M.H. (1999) Experimental and modelling studies of Cs sorption on illite. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 63, 3217-3227.
- Rigol, A., Vidal, M. and Rauret, G. (2002) Overview of the effect of organic matter on soil-radiocesium interaction: implications in root uptake. *J. Environ. Radioactivity*, 58, 191-216.
- Sawhney, B.L. (1970) Potassium and cesium ion selectivity in relation to clay mineral structure. *Clays Clay Mineral*, 18, 47-52.
- Sawhney, B.L. (1972) Selective adsorption and fixation of cations by clay minerals: A review. *Clays Clay Mineral*, 20, 93-100.
- Staunton, S. and Roubaud, M. (1997) Adsorption of ^{137}Cs on montmorillonite and illite: Effect of charge compensating cation, ionic strength, concentration of Cs, K and fulvic acid. *Clays Clay Mineral*, 45, 251-260.
- Takenaka, C., Onda, Y. and Hamajima, Y. (1998) Distribution of cesium-137 in Japanese forest soils: correlation with the contents of organic carbon. *Sci. Total Environ.*, 222, 193-199.
- Tamura, T. and Jacobs. (1960) Structural implications in cesium sorption. *Health Phys.*, 2, 391-398.