

고리주변 해역에서 방사성물질의 흡착특성

Radionuclide adsorption characteristics around Kori coastal water

송영일 · 정양근 · 홍승열 · 서장수* · 조내범**

한전 전력연구원
대전광역시 유성구 문지동 103-16

* 한전 원자력교육원, **한전 고리원자력본부

요 약

고리원전주변 해수를 이용하여 일부 방사성물질의 부유물 흡착성을 실험하였다. 고리주변 해역에서 채수한 해수에 부유물 농도를 각각 상이하게 조정하여 흡착성이 있는 ^{51}Cr , ^{60}Co , ^{139}Ce 방사성물질을 극미량 일정량씩 투입하고 부유물 농도에 따른 방사성물질의 흡착성을 평가하였다. 그리고 ^{137}Cs 은 자연상태에서 부유물과 해수에 용해된 방사성물질의 농도를 비교하여 흡착성을 평가하였다. 평가결과 ^{139}Ce 과 ^{51}Cr 은 흡착성이 매우 높게 나타났으며, 고리 주변의 평균적인 부유물 농도 10 mg/l 상태에서 89%와 83%가 부유물에 흡착될 수 있는 것으로 평가됐으며, ^{137}Cs 과 ^{60}Co 은 2.5%와 7.8%로 흡착율이 낮게 나타났다. 그리고 방사성물질별로 분배계수는 각각 다음과 같은 분포를 보이고 있다. ^{139}Ce : $7\text{E}4 \sim 1\text{E}6$, ^{51}Cr : $3\text{E}5 \sim 5\text{E}5$, ^{60}Co : $4\text{E}3 \sim 8\text{E}3$, ^{137}Cs : $5\text{E}2 \sim 3\text{E}3$. 이 결과는 향후 방사성물질의 이동 평가시 흡착에 의한 침전(scavenging)평가와 방사성물질의 해양거동 평가에 유용한 자료로 활용될 수 있다.

Abstract

The capacity of sediment to adsorb radionuclides from Kori coastal seawater is quantified by distribution coefficient. A very small amount of ^{51}Cr , ^{60}Co , ^{139}Ce are added to seawater sampled around Kori and suspended sediment of seawater is adjusted with various concentration to experiment adsorption. The result of the laboratory simulation shows that ^{139}Ce and ^{51}Cr are adsorbed to suspended particle with 89%, 83% respectively, and ^{60}Co are adsorbed to 7.8%. ^{137}Cs can be quantified sediment adsorption without artificial radionuclide addition, which is adsorbed to 2.5%. The distribution coefficient(Kd) of ^{139}Ce is ranged from $7\text{E}4$ to $1\text{E}6$, ^{51}Cr is $3\text{E}5$ to $5\text{E}5$, ^{60}Co is $4\text{E}3$ to $8\text{E}3$ and ^{137}Cs is $5\text{E}2$ to $3\text{E}3$. It may be utilized to assess radionuclide transport in the marine environment resulting from radionuclide releases.

1. 서론

원자력발전소에서 해양으로 방출되는 미량의 방사성물질은 해수의 유동에 따라 주로 이동하지만 이동 중 일부가 생물체에 흡수되거나 해저로 침전돼 유동과정에서 제거된다. 생물체로 흡수되는 과정은 방사성물질의 전이·농축으로 표현되며, 침전과정은 부유물과 유기물에 흡착되어 해저로 퇴적된다. 그 동안 방사성폐기물의 해양처분과 원자력발전소 및 핵연료 재처리시설 주변에서 방사성 폐기물의 해양 유출에 따른 해양확산 및 유동을 평가하면서 방사성물질의 흡착연구 및 조사가 많이 진행되었다.

원자력발전소에서 방출 가능한 방사성물질은 3H , ^{133}Xe , ^{135}Xe , ^{41}Ar , ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{131}I , ^{89}Sr , ^{90}Sr , 그리고 ^{58}Co , ^{60}Co , ^{59}Fe , ^{54}Mn 등이 있다. 발생원 별로는 불활성 기체, 핵분열 물질, 계통이 부식되면서 생성된 방사성물질, 그리고 핵연료와 제어봉에서 유래된 방사성물질 등으로 구분할 수 있다. 이 중 불활성 방사성물질은 휘발성으로 방출되면서 거의 휘발하기 때문에 해양에서 거의 검출되지 않으며, 3H 는 HTO 형태로 방출되기 때문에 물에 용해돼 해수유동과 함께 이동한다. 그러나 핵분열성 물질과 방사화 부식생성물은 주로 해양에서 용해상태로 해수유동과 함께 이동하지만 주변의 부유물에 흡착하여 이동하기도 한다.

핵분열성 물질과 방사화 부식생성물의 흡착성은 수계의 화학적 거동에 따라 매우 다양하게 나타나며 해역별로 고유한 값을 갖는다. 그러나 우리나라의 경우 이와 같은 조사나 연구가 거의 없어서, 방사성물질의 해양확산 평가나 유동 평가시 해수에서 완전 용해되는 것으로 가정하여 평가하고 있다. 해수에서 용해성과 흡착성은 방사성물질, 해수, 부유물의 화학적 특성에 따라 그 정도가 결정되기 때문에 매우 복잡적이며 가변성이 크게 나타난다. 방사성물질은 이온교환, 응집, 착화합물 형성 등 여러 가지 반응 메커니즘에 의해 주변의 부유물과 흡착반응이 일어나며[1], 대체적으로 해수에 존재하는 물질은 양이온 상태로 존재하며 방사성물질은 음이온 상태로 존재하기 때문에 이온교환에 의한 흡착반응이 매우 높게 일어난다. 해수 중에 양이온 교환능이 큰 이온이 많이 존재할수록 방사성물질의 흡착성은 높게 나타난다. 원자력 발전소에서 방출되는 방사성물질에 대해 흡착특성을 평가한 결과에 따르면 ^{90}Sr 의 흡착성이 가장 낮게 나타나고 있으며, ^{106}Ru 이 가장 높게 나타났다. 이를 순서대로 보면 다음과 같다[2].



방사성물질의 용해성과 흡착성의 비를 분배계수(distribution coefficient or partition coefficient)로 표현하며, 이를 이용하여 방사성물질의 해양확산 및 침전(scavenging)을 평가할 수 있다. 방사성물질이 흡착성이 크다는 것은 유동중인 방사성물질이 해저로 침전돼 퇴적될 가능성이 크다는 것으로 해석할 수 있다. 반면 분배계수가 작으면 방사성물질은 용해성이 매우 커 해수유동을 따라

원거리 해역까지 이동할 가능성이 크다. 분배계수를 추정함으로써 해수와 부유물 퇴적물의 방사성 물질의 분포특성을 예측할 수 있고 방사성물질의 퇴적 특성에 따라 수십년 전부터 운전해온 원자력 시설 주변에서 방사성물질의 퇴적 방사능을 조사하여 방사성물질의 방출이력도 추정할 수 있다.[3]

본 실험에서는 해수와 부유물의 지·화학적 성분과 부유물의 광물학적 특성, 농도, 입도 등에 따라 흡착특성이 각각 상이하게 나타나는 점을 고려하여 고리주변해역의 고유한 흡착특성을 평가하여 분배계수를 설정하기 위한 실험을 실시하였다. 이에 따라 고리주변 해역의 해수와 부유물의 지·화학적 특성을 규명하고 지역특성에 맞는 방사성물질의 흡착에 의한 분배계수를 설정하였다.

2 해양에서의 방사성물질 특성

2.1 고리 주변해역의 화학적 특성

해양으로 방출된 방사성물질은 그 화학적 특성에 따라 해수 중에 존재하는 화학성분과 반응하여 용해되거나 흡착되며 해수의 유동 및 침전에 의한 거동이 결정된다. 해양으로 방출된 방사성물질은 해양에서는 극 미량으로 존재하기 때문에 해수에 다량 존재하는 원소 중에 화학적으로 친화적인 원소와 반응하여 용해성과 흡착성이 결정되고, 용해성은 해수를 따라 유동하고, 흡착성 물질은 흡착된 부유물의 크기에 따라 유동과 해저 지표퇴적 등 다양한 거동이 결정된다. 또 해수의 pH, 수온, 염분도에 따라 방사성물질의 흡착정도가 상이하게 나타나며, 염분도가 낮은 강물이나 만(bay)에서 방사성물질의 흡착정도가 해수보다 높게 나타나고 있다[4]. 이 때문에 해수 중에 존재하는 원소와 수온 염분 도를 검토하여 다른 물리·화학적 특성을 갖는 해역의 흡착성과 비교·평가할 수 있다.

해수 중의 무기원소로는 양이온 상태의 Na, Mg, Ca, K, Br 그리고 음이온 상태로는 Cl, SO₄, HCO₃ 등이 주성분이다. 8가지의 주요원소가 전체의 99.7% 를 차지하고 있으며, 여기에 Sr, B, SiO₂ 까지 포함하면 전체의 99.999%이다[5]. 그 외에 미량 원소로 영양염류로 질소화합물, 인산, 규산 등이 있고, 방사성 핵종으로 우라늄, 라듐, 토륨 등이 있다.

고리원전 주변 해역에서 pH는 8.2 ± 0.3 수준으로 다른 해역과 차이가 없으며, 연안 역에서 표층 수온은 계절별로 15 °C 안팎에서 수온변동이 나타난다. 수심별로는 수심이 깊을수록 수온은 낮게 나타났고 동계와 하계의 수온 변동 폭은 표층수온의 변동 폭과 거의 비슷한 수준을 보였다. 그리고 염분도는 31.1% ~ 34.0%의 변동 폭을 보이고 있다. 표1.은 고리원전 주변해역의 계절별 표층 수온과 염분 분포를 조사한 결과를 보여주고 있다.

표 1. 고리원전 주변 표층수온 및 염분[6]

계절		계절			
		봄	여름	가을	겨울
수온(°C)	표층	13.7 ~ 18.3	25.1 ~ 27.5	15.1 ~ 18.4	13.2 ~ 15.7
	표층	33.9 ~ 34.5	31.1 ~ 31.9	31.1 ~ 33.2	32.1 ~ 34.0

2.2 현탁부유물의 특성

고리 주변 해역의 주요 점토광물(illite, kaolinite, smectite)에 대해 분석한 결과는 전체적으로 illite가 약 65% 이상을 차지하여 가장 많은 분포를 보이는 것으로 나타나고 있다[7]. kaolinite와 chlorite가 17% 정도를 차지하고, smectite는 0.3 %이하로 매우 낮게 나타나고 있다. illite는 K+, Mg++가 많이 포함된 산성 화성암을 모암으로 한 풍산화물로 알려져 있는데 Cs과 같은 방사성물질이 가장 많이 선택적으로 흡수되는 것으로 알려져 있다[1]. kaolinite와 chlorite는 주로 강물을 통해 육상에서 유입된 것으로 외해로 갈수록 함량은 낮게 나타나고 있다. illite는 외해 쪽으로 갈수록 함량이 다소간 증가하는 것으로 나타나고 있고, kaolinite와 chlorite는 연안쪽이 외해보다 다소 높은 분포를 보이고 있다.

고리주변 해역의 현탁 부유물에 대한 입도 분포와 기질형을 분석한 결과[8]는 silt-clay 가 90% 이상인 세립 질로 구성되어있다. 특히 입도 분포는 1km ~ 2km 외해로 나갈수록 더욱 세립질화 되는 경향을 나타내고 있다. 해수중 부유물질의 농도가 높을수록 방사성물질의 부유물 흡착정도는 더 커지게 되며, 부유물의 입도 분포가 세립질 일수록 방사성물질의 흡착 유효 단면적이 크게 나타나므로 부유물의 농도와 입도 분포는 방사성물질의 흡착과 긴밀한 관계가 있다.

2.3 퇴적물의 입도 분포 및 성분

해양저질에서는 방사성물질이 흡착된 부유물이 퇴적되면 주로 착화합물 상태로 존재한다. 원래 부터 존재하는 광물질에 방사성물질이 결합하므로 방사성물질이 결합된 착화합물은 원래부터 존재하는 광물질의 형태에 의해 결정된다. Fe산화물, Mn산화물 등의 형태로 침전되는 경우가 많고, 여러 광물에 방사성물질이 복합적으로 결합하는 형태로 존재하기도 한다[1]. 또 방사성물질에 따라 상이하나 퇴적물의 입도가 세밀할수록 방사성물질과의 반응확률이 높기 때문에 표층 퇴적물의 입도가 중요한 변수가 된다. 고리원전 주변의 저질 형태 조사결과[8]에 따르면 암반, 자갈, 펄 등이 다양하게 나타나며, 원자력발전소와 연안 가까이는 자갈과 모래층이 우세하고 외해로 나갈수록 펄(clay)이 우세하게 나타나고 있다. 배수로 인근과 연안해역에서는 주로 표층의 입도가 조밀한 0.5mm 이상의 입도 분포를 보이고 있으며, 1km ~ 2km 떨어진 해역에서는 입도가 점차 세밀한 silt-clay 성분을 보이고 있으며 0.06mm이하의 입도분포를 보여준다.

3. 실험

자연상태에서는 방사성물질이 거의 검출되지 않기 때문에 자연상태의 해수를 농축하면 ^{137}Cs 이나 ^{89}Sr 은 방사성물질에 대한 흡착성을 분석할 수 있다. 이 경우도 방사능 준위가 낮기 때문에 해수와 부유물에서 방사성물질이 검출 가능한 수준의 해수와 부유물을 채수하여야 하며, 통상 원자력발전소에서는 이들 방사능을 검출하기 위해 40ℓ 이상의 해수를 채수하여 분석한다. 그러나 40ℓ 해수에서도 현탁부유물의 농도가 10 mg/ℓ 수준으로 매우 낮기 때문에 부유물을 분석하기 위해서는 100ℓ 이상의 해수를 채수하여 부유물을 분리하여야 한다. 그래서 40ℓ의 해수를 채수하여 부유물을 조금씩 투입하여 검출 가능한 수준의 현탁 부유물 농도로 조정하고, 흡착성을 띤 인공 방사성물질을 미량 투입하여 흡착성을 실험하였다.

이를 위해 고리원전 주변 해역에서 수심 4m 정도에서 40ℓ씩 해수를 채수하여 수조에 담고, 고리 주변해역의 해저 표층에서 채취하여 건조시킨 후 분쇄한 부유물을 일정량씩 투입하여 부유물의 농도를 130 mg/ℓ, 500 mg/ℓ, 900 mg/ℓ로 조정하였다. 채수 당시 수온과 염분은 14℃, 33.2‰이었다. 그리고 해수에 ^{51}Cr , ^{60}Co , ^{139}Ce 방사성물질 spike 시료를 극미량 투입하고 수용성 방사성물질 농도와 부유물에 흡착된 방사성물질의 농도를 측정하고, 부유물의 농도와 방사성물질의 흡착관계를 실험하였다. 방사성물질이 부유물 해수와 충분히 반응하여 평형상태를 이룰 수 있도록 방사성물질 투입 후 수조는 100rpm 정도의 속도로 교반하였다. Ce는 방사성물질의 흡착 반감기가 10시간 정도[1], Co는 4시간 정도[3]로 보고되고 있어, 하루정도 해수를 교반시키면 방사성물질과 흡착반응은 평형상태에 도달한다. 하루동안 교반시킨 후 해수를 여과하여 부유물을 분리하고 해수 중 Cs는 AMP 공침법으로 회수하고, Co, Cr, Ce는 MnO_2 공침법으로 분리하여 건조시킨 후 각각의 방사성물질의 농도를 구하고 부유물의 농도와 해수의 농도비를 비교하였다.

4. 결과 및 토의

^{51}Cr , ^{60}Co , ^{139}Ce 방사성물질은 흡착성이 매우 높게 나타났다. 반면 자연상태의 ^{137}Cs 은 흡착성이 매우 낮게 나타났다. 방사성물질 별 분배계수는 표2에 제시하였으며 부유물 농도와 분배계수의 상관관계를 그림 1과 그림2에 제시하였다. 일반적으로 흡착 반응성이 좋은 원소일수록 부유물의 포화농도는 높게 나타날 것이며, 흡착성이 낮은 원소일수록 부유물의 포화농도는 낮게 나타날 것이다. ^{60}Co , ^{139}Ce , ^{137}Cr 은 부유물 농도가 증가함에 따라 분배계수는 조금씩 감소하는 경향을 보이고 있으며, ^{51}Cr 은 거의 일정한 값을 보이고 있다. ^{139}Ce 는 400 mg/ℓ 수준 까지도 흡착반응이 일어날 수 있다는 것으로 해석할 수 있다. 그러나 다른 원소는 부유물의 농도가 증가하더라도 분배계수는 일정하거나 조금 감소하는 경향을 나타내는 것으로 보아 부유물의 포화농도는 130 mg/ℓ 수준 이하 정도로 추정된다.

표2. 방사성물질별 분배계수

부유물 방사성물질	133(mg/l)	497(mg/l)	957(mg/l)
Ce-139	9E5	1E6	7E4
Cr-51	5E5	3E5	4E5
Co-60	8E3	4E3	3E2
Cs-137	3E3	1E3	5E2

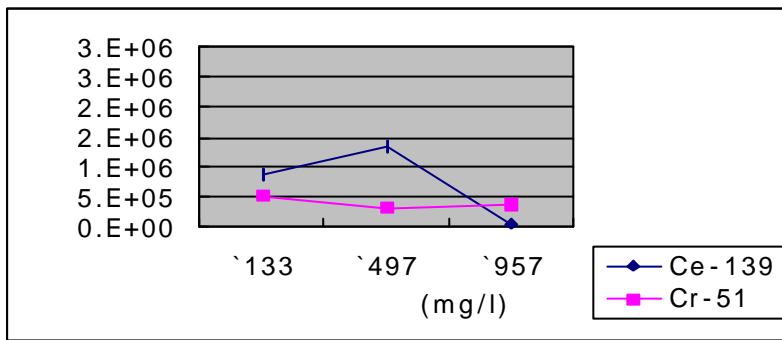


그림1. ^{139}Ce , ^{51}Cr 의 부유물 농도 대비 분배계수

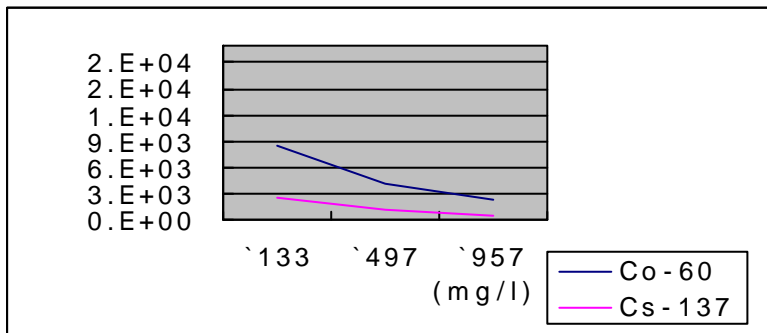


그림2. ^{60}Co , ^{137}Cs 의 의 부유물 농도 대비 분배계수

특히 ^{137}Cs 은 부유물의 농도가 증가할수록 방사성물질의 절대적 흡착량은 증가하지만 단위 무게당 방사성물질의 흡착량을 나타내는 분배계수는 약간 감소하는 현상이 많이 나타난다[1].

평상시 고리원전 주변에서 부유물의 농도는 10 mg/l 수준으로 매우 낮기 때문에 방출된 방사성 물질은 부유물에 충분히 흡착되는 것으로 추정할 수 있다. 또 고리주변에서는 연안에서는 모래성분의 조립질 성분이 많이 나타나고 연안에서 1km ~ 2km 외해로 나갈수록 부유물이 세립질화 되기 때문에 외해 쪽으로 나가면서 펄 상태의 미세한 부유물에 방사성물질이 많이 흡착될 것으로

추정된다.

실험을 통해 구한 방사성물질 분배계수를 이용하여 방사성물질의 흡착비율을 추정하였다. 분배계수는 133mg/ℓ 수준에서 구한 값 수준으로 평가하였다. 방사성물질이 부유물에 흡착되는 량과 해수 중에 용해되는 양을 구하여 전체 방사성물질 중 부유물에 흡착되는 비율을 구하였다. 부유물의 농도가 10 mg/ℓ 일 경우 ^{137}Cs 은 89%, ^{51}Cr 은 83%로 거의 대부분이 부유물에 흡착되는 것으로 나타났다. 그러나 ^{60}Co 과 ^{137}Cs 은 7.8%와 2.5% 정도가 흡착되는 것으로 나타나 흡착율이 매우 낮게 나타났다. 흡착율은 해수 중 부유물의 농도가 클수록 높게 나타나기 때문에 흡착율을 일정한 값으로 단정하기는 어렵다.

본 실험을 통하여 몇 가지 방사성물질의 흡착실험을 통한 분배계수를 설정하였다. 그리고 부유물의 입도가 세밀하고 펄(clay) 성분에서 방사성물질의 흡착성은 높게 나타난다. 고리주변해역은 부유물 입도 뿐 아니라 부유물의 성분도 다양한 특성을 띄고 있다. 부유물 중 silt-clay 가 90%이 상인 세립 질로 구성되어있고 clay mineral에 대한 성분조사 결과는 illite가 65%로 나타나 입도 분포와 부유물의 성분이 방사성물질의 흡착에 유리한 조건을 보여준다. 그러나 고리 주변의 다양한 부유물 입도분포와 부유물 성분에 따라 방사성물질의 흡착성을 조사하고 여름철과 같은 고 수온기에 방사성물질의 흡착성을 추가로 조사하여 방사성물질의 흡착성을 종합적으로 평가할 필요가 있다.

참고문헌

1. Onishi, Y. et.al., Critical review Radionuclide Transport, Sediment Transport, and Water Quality Mathematical Modelling; and Radionuclide Adsorption/Desorption Mechanism, 1982
2. National Academy of Sciences, Radioactivity in the Marine Environment, 1971
3. P. McDonald, et. al., The distribution coefficient of ^{60}Co in sediments from the Solway Firth, UK, 1997
4. C.R. Olsen and I.L. Larson, Radionuclide distribution and sorption in the Susquehanna-Chesapeake Bay System, 1989
5. 서춘추길 외, 해양화학, 대한교과서 (주), 1984.
6. 전력연구원, 원자력발전소 주변 일반환경조사 및 평가보고서, TR.C97TS01.98.52, 1998
7. 김대철, 김정무, 고리부근 현탁물 중 점토광물 분포에 관한 연구, 한수산지 23, 145 ~154, 1990
8. 한국전력공사, 고리원전주변 해양방사능 종합조사, 1998
9. Sediment Kds and concentration factors for radionuclides in thw marine environment, IAEA tech, report No.247, 1985
10. 한국전력공사, 월성원전주변 해양방사능 종합조사, 1995