물속의 방사성핵종(세슘) 제거율 연구

Study on Removal of Cesium in Water Treatment System

정관조[†] · 손보영 · 안치화 · 이수원 · 안재찬 · 김복순 · 정득모

Gwanjo Jeong[†] · Boyoung Son · Chihwa Ahn · Suwon Lee

Jaechan Ahn · Bogsoon Kim · Deukmo Chung

서울특별시 서울물연구원

Seoul Water Institute, Seoul Metropolitan Government

(Received November 26, 2015; Revised January 8, 2016; Accepted January 20, 2016)

Abstract : This study investigated the removal of a radioactive cesium (Cs^+) in the water at the water treatment processes. Since cesium is mostly present as the Cs^+ ion state in water, it is not removed by sand filtration, and coagulation with polyaluminum chloride (PACl), powdered activated carbon (PAC) and mixture of PACl and PAC. However, it is known that the removal rate of cesium increases as the turbidity increases in raw water. As the turbidity was adjusted by 74 NTU and 103 NTU using the surrounding solids near G-water intake and yellow soils, removal rate of cesium was about 56% and 51%, respectively. In case of a GAC filtration with supernatants after jar-mixing/setting was conducted, 80% of cesium is approximately eliminated. The experimental results show that it is efficient to get rid of cesium when the turbidity of the raw water is more than 80 NTU. In case of a GAC filtration, about 60% of cesium is removed and it is considered by the effect of adsorption. Cesium is not eliminated by microfiltration membrane while about 75% of cesium is removed by reverse osmosis.

Key Words : Cesium, Granular Activated Carbon, Turbidity, Reverse Osmotic Membrane

요약 : 본 연구에서는 물속에 존재하는 방사성 세슘(Cs^+)의 정수처리 제거방법을 고찰하였다. 세슘은 물속에서 대부분 이온 상태인 Cs^+ 로 존재하여 모래여과, 정수약품(PACl), 분말활성탄(PAC) 및 정수약품(PACl + PAC) 혼합주입에 의해 제거되지 않았으나 탁도가 증가함에 따라 세슘 제거율이 증가하는 것으로 나타났다. G-취수장 주변 고형물과 황토를 이용하여 탁도를 각각 74 NTU와 103 NTU로 조정했을 때 세슘의 제거율은 각각 약 56%, 51%이었으며 상정수를 GAC로 여과한 경우, 세슘의 약 80%가 제거되었다. 따라서 효과적인 세슘 제거를 위해서는 황토 등을 이용하여 원수 탁도를 80 NTU 이상 조정해야 하는 것으로 나타났다. GAC에 의한 세슘 제거의 경우, 약 60%가 제거됨을 알 수 있었으며 이것은 접촉에 따른 흡착에 의해 제거된 것으로 판단된다. 막에 의한 세슘 제거에 있어서 정밀여과막으로는 제거되지 않았으나 역삼투막에서는 75%가 제거되었다.

주제어 : 세슘, 입상활성탄, 탁도, 역삼투막

1. 서론

세슘(cesium, Cs)은 원자량 112~151 사이에 30여종의 동위원소가 존재하는 것으로 알려져 있으며 자연상태에 존재하는 안전 동위원소인 Cs-133을 제외한 다른 동위원소는 핵반응을 통해 생성된 방사성 동위원소로 대부분 반감기가 매우 짧다.^{1,2)} 방사성 세슘은 우라늄이나 플루토늄이 핵 분열할 때 기체 물질인 방사성 요오드(I)나 제논(Xe)을 거쳐 생성되며, 이들 기체 물질은 바람이나 확산에 의해 이동하기 때문에 방사성 세슘도 처음의 핵분열 장소에서 멀리 떨어진 곳에서도 발견된다. 방사성 동위원소로 핵분열 생성물에서 가장 큰 비중을 차지하는 Cs-135 (6.9%)은 반감기가 230만년으로 시간당 나오는 방사선의 양은 반감기가 30.2년인 Cs-137과 2.06년인 Cs-134에 비해 위험성은 매우 낮다. 따라서 세슘의 위험성은 핵분열 생성물인 Cs-134와 Cs-137에 의한 방사선 피폭 위험을 의미하며 이것은 Cs-134와 Cs-137을 제외한 세슘 방사성 동위원소들은 모두 반

감기가 14일 미만이며 대부분은 1시간 미만이기 때문이다.^{1,3,4)} Cs-137 원자핵은 베타(β^-) 붕괴를 거쳐 질량수는 같으나 원자번호가 하나 더 많은 바륨(Ba) 원자핵으로 전환된다. 이 때 생성되는 바륨 원자핵의 95%는 준안정한 상태인 Ba-137 m이다. Ba-137 m은 비교적 강한 감마(γ)선을 방출하고 안정한 Ba-137으로 되며 반감기는 2.55분이다. Cs-134 원자핵은 베타(β^-) 붕괴 후 감마선을 방출하고 안정한 Ba-134로 전환한다.^{3,5)} 따라서 Cs-134와 Cs-137에 의한 방사선 피해는 주로 세슘이 안정한 바륨으로 변할 때 방출하는 강한 감마선에 의한 것이다. 이러한 세슘에 대한 안전성을 위해 세계보건기구(WHO)는 Cs-134와 Cs-137에 대해 먹는물 수질기준을 10 Bq/L 미만으로 설정하고 있다. 환경 중에 존재하는 Cs-134와 Cs-137의 주요한 원천은 과거 1945년부터 현재까지 핵무기 실험과 원전 및 핵연료 재처리 시설을 포함한 원자력 시설과 방사성폐기물의 심해투기에서 기인하는 것으로 알려져 있다.^{5,6)} 2011년 3월 일본 대지진으로 도쿄 전력의 후쿠시마 다이치 원전 폭발이 발생

[†] Corresponding author E-mail: jgj730@seoul.go.kr Tel: 02-3146-1761 Fax: 02-3146-1759

하였으며 이로 인해 많은 양의 인공방사성핵종이 환경 중으로 방출되었다. 핵사고 후 환경 중에 방출된 주요 방사성핵종은 Cs-134, Cs-137, I-131(반감기, 8.05일) 등이었으며 원전 폭발 후 Cs-134와 Cs-137이 후쿠시마현 타무라시 수돗물에서 검출되었다.⁵⁾ 원전 사고 후 공기 중에 방출된 세슘은 지표수에 입자나 용존성, 콜로이드 형태로 존재하며 용존성 세슘은 Cs^+ ($^{134}Cs^+$, $^{137}Cs^+$) 형태로 존재하는 것으로 알려져 있다.^{5,7,8)} 또한 물속의 세슘이온은 지표수의 수질 특성에 따라 입자성과 용존성의 존재 비율이 다르며 제거 방법에 따른 제거율도 지역의 수질 특성에 따라 상이하게 나타날 것으로 판단된다. 즉, 물속에 존재하는 입자성 세슘은 표준정수처리공정의 혼화-응집-침전과정에서 대부분 제거되나 용존성 세슘의 제거율은 매우 낮을 것으로 예상된다. Gafvert 등⁹⁾의 연구에서 원수 탁도가 0.8 FNU로 낮을 때, Cs-137의 제거효과는 혼화-응집-침전과정과 모래여과에서 매우 낮았으며 이것은 물속에 존재하는 Cs-137이 대부분 용존성 세슘인 Cs^+ 로 존재하기 때문이라 보고했으며,⁸⁾ Morton 등⁷⁾은 실험실 규모의 실험에서 물속에 존재하는 용존성 세슘인 $^{134}Cs^+$, $^{137}Cs^+$ 은 혼화-응집-침전과정에서 제거되지 않는다고 보고했다. 또한 Kosaka 등⁵⁾은 물속에 입자 형태로 존재하는 Cs-134와 Cs-137는 혼화-응집과정 및 모래여과에서 유사한 제거 비율로 매우 효과적으로 제거되었으나 용존성 형태로 존재하는 $^{134}Cs^+$, $^{137}Cs^+$ 는 거의 제거되지 않는다고 하였다. 우리나라의 경우, 방사성 세슘의 제거를 위해 환경부는 방사성물질 누출 사고시 정수처리 대응조치(경계 및 심각단계)로 염소주입 강화(0.5~1.0 mg/L), 정수약품인 응집제 과량 투입(50~60 mg/L), 분말활성탄 투입(10~20 mg/L)을 권장하고 있다. 그러나 이러한 환경부의 정수처리 대응조치는 입자성 세슘의 제거에는 적용 가능하나 용존성 세슘의 제거에는 효과적이라고 판단되지 않는다. 따라서 방사성 세슘 누출 사고시 수돗물을 생산하는 정수처리과정에서 용존성 세슘의 제거를 위해 적용 가능한 효과적인 제거방법의 연구가 필요하다.

이에 본 연구에서는 유사시 방사성물질 누출 사고에 적극 대처하고자 핵실험 및 원전 사고시 누출되어 물속에 존재하는 용존성 세슘(Cs^+)에 대해 정수처리과정에서 사용되고 있는 정수약품, 활성탄, 여과막의 제거효과 실험을 실시하고 합리적인 제거방법을 도출하고자 하였다.

2. 실험방법

방사성 세슘(Cs-134, Cs-137)은 자연상태에 존재하지 않으므로 동위원소로 화학적 성질이 유사한 Cs-133을 사용하여 용존성 세슘 제거율을 검토하였다. Cs-133은 Cs-134, Cs-137와 동위원소로 용존성 세슘의 존재형태는 Cs^+ ($^{133}Cs^+$, $^{134}Cs^+$, $^{137}Cs^+$)로 동일하며 물속에서의 거동과 정수처리과정에서의 제거율도 유사할 것으로 예상된다.

정수약품(polyaluminum chloride, PACl), 분말활성탄(pow-

dered activated carbon, PAC), 정수약품과 분말활성탄 혼합(PACl + PAC) 주입에 의한 제거율 실험은 자-시험(jar-test, kynel)으로 실시하였고 실험조건은 서울시 Y-아리수정수센터 자-시험 운영조건과 동일하게 하였다. 즉, 교반조건은 150 rpm (1 min), 65 rpm (5 min), 55 rpm (5 min), 40 rpm (5 min)으로 급속 및 완속교반을 실시하였으며 30 min 정지 후 상징수를 채취하여 세슘을 측정하였다. 입상활성탄(granular activated carbon, GAC)에 의한 제거 실험은 사용 중인 활성탄에 존재할 수 있는 미생물, 점액질 등 다양한 요소에 의한 영향을 고려하여 신탄과 사용 중인 구탄 등 2가지 입상활성탄에 대해 실시하였으며 구탄은 Y-아리수정수센터의 입상활성탄 여과지에서 채취하였다. 막에 의한 제거 실험은 시판되고 있는 W사 정밀여과막(microfiltration membrane, MF)과 역삼투막(reverse osmosis membrane, RO)을 사용하였다.

2.1. 시료 채취 및 전처리

세슘 제거 실험을 위해 자-시험용 바탕시료로 서울시 G-취수장 원수 20 L을 채수하여 0.45 μm 여과지로 여과하였다. 채수한 원수의 탁도는 3.6 NTU, pH는 7.3이었다. 자-시험을 실시하기 전 바탕시료로 여과한 원수에서 10 mL씩 3 점을 분취한 후 질산 1%를 첨가하여 ICP-MS로 세슘 농도를 측정하였다.

2.2. 분석기기

세슘 측정을 위한 ICP-MS (PerkinElmer, NexION 350D, USA) 분석조건으로 질량위치는 $m/z = 133$ 을 선택하였으며 분석에 사용된 아르곤 기체의 유속은 plasma gas는 18 L/min, auxiliary gas는 1.2 L/min, nebulizer gas는 0.99 L/min으로 사용하였다. 또한 QID는 -7.5 V, RPq (rejection parameter Q)는 0.25 N/A, RF power는 1,600 W, integration time는 1,500 ms, dwell time는 50 ms에서 측정하였다. 시료 도입장치는 cyclonic spray chamber와 meinhart type nebulizer, auto-sampler는 ASX-520을 사용하였다. 1 $\mu g/L$ setup solution

Table 1. Conditions and parameters of ICP-MS for cesium analysis

Parameter	Setting/Type
ICP-MS spectrometer	PerkinElmer NexION 350D
RF power	1,600 W
Plasma Ar gas flow	18 L/min
Auxiliary Ar gas flow	1.2 L/min
Nebulizer Ar gas flow	0.99 L/min
Nebulizer	Type A Quartz, 0.5 mL/min
Spray chamber	Quartz cyclonic type
Interface cones	Platinum
RPq	0.25 N/A
QID	-7.5 V
Dwell time	50 ms
Integration time	1,500 ms
Analytical mass	m/z 133
Reaction cell gas flow	none

에 대한 최적화 조건은 Be($> 2,000$, $m/z = 9$)는 4,918 cps, In($> 40,000$, $m/z = 115$)는 80,729 cps, U($> 30,000$, $m/z = 238$)는 89,050 cps로 우수하게 나타났다. Table 1에 세슘 분석을 위한 ICP/MS 분석조건을 나타내었다.

2.3. 시약

분석에 사용된 시약은 분석급 또는 그 이상을 사용하였으며 초자기구는 2% 질산에 30분 처리한 후 탈이온수로 헹구어 사용하였다. 시료 전처리에 사용된 질산과 염산은 JKC (MS-10, 국산)사 class-8을 사용하였다.

세슘 제거를 실험을 위한 자-시험용 세슘 10 $\mu\text{g/L}$, 20 $\mu\text{g/L}$ 시험용액은 시판되는 1,000 mg/L (spex, USA) 표준원액을 구매하여 여과한 G-취수장 원수에 일정량 주입하여 조제했다. 자-시험 후 채취한 상등수 중의 세슘 측정을 위해 1,000 mg/L 표준원액을 탈이온수에 희석하여 1 $\mu\text{g/L}$, 2 $\mu\text{g/L}$, 4 $\mu\text{g/L}$, 8 $\mu\text{g/L}$, 10 $\mu\text{g/L}$, 15 $\mu\text{g/L}$, 20 $\mu\text{g/L}$ 표준용액을 조제하였으며 여과한 G-취수장 원수 중의 세슘 측정을 위해 0.003 $\mu\text{g/L}$, 0.005 $\mu\text{g/L}$, 0.008 $\mu\text{g/L}$, 0.010 $\mu\text{g/L}$ 표준용액을 조제했다. 표준용액 조제시 질산 1%를 첨가했으며 분석마다 1,000 mg/L 표준원액으로부터 표준용액을 조제하여 사용했다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 세슘(Cs^+) 제거율

자-시험용 시험용액의 바탕시료로 사용하는 여과한 G-취수장 원수에서의 세슘 농도를 측정한 결과, 평균 0.008 $\mu\text{g/L}$ 로 나타났다. 이 농도는 바탕시료에 세슘을 첨가하여 10 $\mu\text{g/L}$, 20 $\mu\text{g/L}$ 를 조제한 자-시험용 시험용액에 영향을 미치지 않을 것으로 판단된다. 또한 G-취수장 물속의 세슘 존재형태를 파악하기 위해 0.45 μm 여과지로 여과 전후의 세슘 농도를 측정한 결과, 평균 0.009 $\mu\text{g/L}$, 0.008 $\mu\text{g/L}$ 로 유사하게 나타났다. 따라서 G-취수장 물속에 존재하는 세슘이 대부분 용존성 세슘인 Cs^+ 형태로 존재하는 것으로 추정되었다.

3.1.1. 정수약품(PACI)에 의한 제거

PACI 주입에 의한 세슘 제거 실험은 실험방법에 나타난 자-시험 운영조건과 동일하게 실시하였다. 사용된 시험용액의 세슘 농도는 10 $\mu\text{g/L}$ 이었으며 PACI의 주입량은 일반적인 정수처리공정 운영에서 최대 주입 가능한 30 mg/L을 기준으로 4 mg/L 간격으로 증가시키면서 0~28 mg/L 범위에서 세슘 제거 변화를 관찰하였다.

실험결과, 세슘은 정수약품 PACI에 의해 거의 제거되지 않는 것으로 나타났다. 이것은 시험용액 중에 존재하는 세슘이 대부분 양전하를 띤 용존성 세슘이온(Cs^+)으로 존재하고, 알루미늄계-무기응집제인 PACI이 물속에서 대부분 양전하(+)의 무기수산화물을 형성하여 양전하(+) 입자간의

쿨롱 반발력에 의해 제거되지 않는 것으로 판단된다. 이것은 Kosaka 등⁵⁾의 용존성 세슘이온인 $^{134}\text{Cs}^+$, $^{137}\text{Cs}^+$ 은 혼화-응집-침전과정에서 제거되지 않는다는 연구결과와 동일한 결과를 보였다.

3.1.2. 분말활성탄(PAC)에 의한 제거

세슘 제거 실험에 사용된 PAC는 유효입경이 0.35~0.45 μm 인 석탄계와 목탄계(야자계)를 1:1로 혼합한 혼합-분말활성탄을 사용하였다. 시험용액의 세슘 농도는 10 $\mu\text{g/L}$ 이었으며, PACI 12 mg/L을 주입한 후 PAC를 10 mg/L 간격으로 50 mg/L까지 증가시키면서 실험방법에 나타난 자-시험 조건으로 세슘의 제거 변화를 고찰하였다. 일반적인 정수처리공정 운영에서 주입 가능한 분말활성탄의 최대 주입농도는 정수처리 시설에 따라 다소 차이는 있으나 약 40~50 mg/L이다.

Morton 등⁷⁾에 의하면 물속에 존재하는 용존성 세슘인 $^{134}\text{Cs}^+$, $^{137}\text{Cs}^+$ 은 양이온교환수지에 의해 각각 95%, 92% 제거되며 PAC에 의한 제거는 각각 7%, 0%로 거의 제거되지 않는다고 보고하였다. 본 연구에서도 PAC에 의한 세슘 제거는 거의 없는 것으로 나타났다. 이것은 분말활성탄의 주요 기작은 흡착성이나 물속에서 약한 양전하(+)를 띠므로 세슘이온과의 반발력에 의해 흡착효율이 떨어져 세슘이온이 제거되지 않는 것으로 판단된다. 또한 PAC 주입량 및 접촉시간 차이에 따른 세슘의 제거효과를 검토하기 위해 PAC 주입량과 접촉시간을 증가시켜 세슘 제거 변화를 고찰하였다. 접촉시간은 방사성물질 유입 사고시 Y-아리수정수센터 내의 PAC 주입 지점인 착수정이 아닌 취수장 또는 도수관로에서 PAC와 PACI 주입의 경우를 가정하여 최대 3시간으로 실험하였다. 시험용액의 세슘 농도는 10 $\mu\text{g/L}$ 이었으며, PACI 12 mg/L을 주입한 후 PAC를 10 mg/L, 20 mg/L, 30 mg/L, 40 mg/L, 50 mg/L, 100 mg/L로 증가시키면서 세슘 제거 실험을 실시하였다. 실험방법에 나타난 조건과 동일하게 자-시험을 실시한 후 40 rpm으로 2 hr 동안 완속교반을 추가 실시하였고, 30 min 정지 후 상정수를 채취하여 세슘 농도를 측정했다. 그 결과, 세슘 농도는 9.6~10.0 mg/L로 거의 제거되지 않는 것으로 나타나 PAC 주입량과 접촉시간의 증가가 세슘 제거에 영향을 미치지 않은 것을 확인할 수 있었다.

3.1.3. 정수약품(PACI)과 분말활성탄(PAC) 혼합주입에 의한 제거

표준정수처리공정에서 수처리제 혼합주입에 의한 세슘 제거 효과를 검토하기 위해 먼저 PAC를 0~50 mg/L 범위에서 10 mg/L 간격으로 자-시험 용기에 주입하고, 150 rpm으로 3 min 동안 급속 교반하여 분말활성탄과 세슘과의 접촉효율을 증가시켰다. 이후 5 min 정지한 후 실험방법에 나타난 자-시험 조건으로 PACI를 0~28 mg/L 범위에서 4 mg/L 간격으로 주입량을 증가시켜 세슘의 제거 변화를 고찰하였다. Table 2에 정수약품 혼합주입에 따른 세슘의 제거 변화를 나타냈다.

Table 2. Removal of cesium by mixed injection (PACI + PAC)

Jar-test (Initial concentration)	PACI (mg/L)	PAC (mg/L)	Cs ($\mu\text{g/L}$)	Removal efficiency (%)
Cs (10 $\mu\text{g/L}$)	0	0	10.1	0.0
	8	0	10.0	0.0
	12	10	10.0	0.0
	16	20	10.1	0.0
	20	30	10.0	0.0
	24	40	9.9	1.0
	28	50	9.9	1.0

실험결과, Table 2와 같이 PACI 28 mg/L과 PAC 50 mg/L까지의 혼합 주입으로는 세슘이 제거되지 않은 것이 확인되었다. 이것은 Gafvert 등⁹⁾이 원수 탁도가 낮고, 물속에 존재하는 세슘이 대부분 용존성 세슘으로 존재할 때 혼화-응집-침전과정과 모래여과에서 제거되지 않는다는 주장과 일치하였다.

3.1.4. 탁도 증가에 따른 세슘 제거

원수 탁도 증가가 용존성 세슘 제거에 미치는 영향을 검토하기 위해 서울시 G-취수장 원수(탁도 3.6 $\approx$ 4 NTU) 20 L을 채수하였고 주변 고형물 0.5 kg을 채취하였다. G-취수장 원수를 0.45 μm 여과지로 여과하여 자-시험의 바탕시료로 사용하였다. 준비된 바탕시료에 고형물을 첨가하여 탁도를 11 NTU, 24 NTU, 35 NTU, 74 NTU로 증가시켰다. 탁도를 조정된 시료에 PACI를 12 mg/L (Y-아리수정수센터 PACI 연 평균 주입농도) 주입하고 실험방법에 나타난 조건으로 자-시험을 실시하였다. Table 3에 탁도 증가에 따른 세슘 제거 변화를 나타내었다.

물속에 존재하는 입자성 부유물질은 대부분 음전하(-)의 입자로 용존성 세슘(Cs^+) 및 입자성 세슘 일부는 물속에 존재하는 작은 입자에 입자 간의 쿨롱 인력에 의해 흡착될 수 있으며 혼화-응집-침전과정에서 제거가 가능할 것으로 예상되었다.^{10,11)} 본 연구에서도 Table 3과 같이 탁도가 4 NTU, 11 NTU, 24 NTU, 35 NTU, 74 NTU로 증가할 때 세슘 제거율도 0%, 14%, 24%, 35%, 56%로 증가하였다. 그러나 Cornell¹²⁾과 Staunton¹³⁾의 연구결과보다 낮은 제거율(탁도 10도일 때, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs는 각각 67%, 73% 제거)을 나타냈으며 이것은 지역별 지표수의 수질 특성에 따라 물속에 존재하는 세슘의 입자성과 용존성의 존재 비율이 다르고 실험

Table 3. Removal of cesium by increment of turbidity with surrounding soil at G-intake

Jar-test (Initial concentration)	Turbidity (NTU)	Cs ($\mu\text{g/L}$)	Removal efficiency (%)
Cs (10 $\mu\text{g/L}$)	4	10.0	0
	11	8.6	14
	24	7.6	24
	35	6.5	35
	74	4.4	56

방법의 차이로 인한 것으로 판단된다. Kobayashi 등¹⁴⁾의 연구에 의하면, 혼화-응집-침전에 의한 강물(탁도 10도)에서의 ¹³⁷Cs⁺의 제거율은 10.9~31.0%이었고, 고형물을 첨가하여 탁도를 95도(°)로 조정한 경우, 세슘 제거율은 71~76%로 상승했다. 따라서 부유입자 첨가에 의한 세슘 제거율은 부유입자의 형태와 실험조건에 의존한다고 보고하였다.

3.1.4.1. 황토에 의한 탁도 증가에 따른 세슘 제거

방사성물질 누출 사고시 세슘 제거를 위해 황토를 이용한 원수 탁도 증가에 따른 세슘 제거 효과를 검토하기 위해 서울시 G-취수장 원수(탁도 5.57 $\approx$ 6 NTU) 20 L을 채수하였고 분말형 황토(325 mesh, Hawngtto Art)를 첨가하여 탁도를 28 NTU, 37 NTU, 55 NTU, 70 NTU, 92 NTU, 103 NTU로 증가시켰다. 탁도를 조정한 시료에 PACI를 12 mg/L 주입하고 실험방법의 조건으로 자-시험을 실시하였다. Table 4에 황토에 의한 탁도 증가에 따른 세슘 제거 변화를 나타내었다.

물속의 황토입자는 대부분 음전하(-) 입자 형태로 존재할 것으로 판단되며 용존성 세슘(Cs^+)과 쿨롱 인력에 의해 흡착되어 혼화-응집-침전과정에서 제거가 가능할 것으로 예상되었다. 그러나 Table 4와 같이 탁도가 6 NTU, 28 NTU, 37 NTU, 55 NTU, 70 NTU, 92 NTU, 103 NTU로 증가할 때 세슘 제거율도 0%, 16%, 25%, 33%, 44%, 47%, 51%로 증가했으나 G-취수장 주변 고형물에 의한 탁도 증가보다는 낮은 제거율을 나타냈다.

정수처리공정에 활성탄 공정이 도입된 고도정수처리에서의 세슘 제거 효과를 고찰하기 위해 G-취수장 주변 고형물과 황토를 이용하여 탁도를 각각 74 NTU와 103 NTU로 조정하여 자-시험을 실시한 시료의 상징수를 채취하여 서울시 Y-아리수정수센터의 입상활성탄 여과지 운영조건과 동일한 체류시간(20 min)으로 GAC에 의한 세슘 제거 실험을 실시하였다. Table 5에 원수 탁도를 각각 74 NTU, 103 NTU로 조정된 후 자-시험을 실시한 시료의 상징수를 GAC에 통과시켜 세슘의 제거 변화에 대해 실험한 결과를 나타냈다.

원수 탁도가 74 NTU, 103 NTU일 때, 혼화-응집-침전공정과 GAC 공정에서 세슘의 약 78~79%가 제거되어 세슘의 80% 이상 제거를 위해서는 황토 등 고형물을 이용하여 원수 탁도를 80 NTU 이상으로 조정해야 하는 것으로 나타났다.

Table 4. Removal of cesium by increment of turbidity with yellow soil

Jar-test (Initial concentration)	Turbidity (NTU)	Cs ($\mu\text{g/L}$)	Removal efficiency (%)
Cs (20 $\mu\text{g/L}$)	6	20.0	0
	28	16.8	16
	37	15.1	25
	55	13.4	33
	70	11.2	44
	92	10.6	47
	103	9.8	51

Table 5. Removal of cesium by granular activated carbon

	Jar-test	Sample (*Cs, μg/L)	Mi-Co- Se (μg/L)	GAC (μg/L)	Removal efficiency (%, avg.)
Surround- ing soil at G-intake	Turbidity : 74 NTU PACI : 12 mg/L	10	4.4	2.1	79
Yellow soil	Turbidity : 103 NTU PACI : 12 mg/L	20	9.8	4.3	78

*Cs : Initial concentration of cesium

Mi-Co-Se : mixture-coagulation-sedimentation

다(Table 5). 서울시의 경우, 고도정수처리(입상활성탄)의 도입으로 방사성물질 사고시 원수 탁도를 80 NTU 이상으로 조정할 경우, 방사성 세슘의 80% 이상 제거가 가능할 것으로 판단된다.

3.1.5. 입상활성탄(GAC), 막(MF, RO)에 의한 제거

입상활성탄에 의한 세슘의 제거는 사용 중인 입상활성탄에 존재하는 미생물 등의 영향을 고려하여 신탄과 구탄 등 2가지 입상활성탄을 사용하였다. 실험에 사용한 입상활성탄은 균등계수 1.64, 유효입경 0.92 mm인 석탄계로 신탄, 구탄 모두 Y-아리수정수센터에서 사용하는 석탄계 입상활성탄을 사용하였다. 실험조건은 Y-아리수정수센터의 입상활성탄 여과지 운영조건(체류시간 20 min)과 동일하게 하였다. 또한 입상활성탄에 의한 세슘의 제거 기작이 여과기능 또는 흡착기능에 의한 것인지를 확인하기 위해 Y-아리수정수센터 모래여과지의 모래를 채취하여 여과 실험을 실시하였다.

막에 의한 세슘의 제거 실험은 W사 정밀여과막(MF)과 역삼투막(RO)을 사용하였고, 0.5 kW(약 30 L/min) 펌프를 사용하여 시료를 막에 주입하였다. Table 6에 모래, 막 종류 및 GAC에 의한 세슘 제거 실험결과를 나타내었다.

Table 6과 같이, 모래여과에 의한 세슘은 거의 제거되지 않는 것으로 나타났다. 이것은 시험용액 중의 세슘 대부분이 이온상태인 Cs^+ 로 존재하여 모래여과에 의해 제거되지 않는 것으로 추정된다. GAC에 의한 세슘 제거는 신탄과 구탄 모두 약 60%로 유사한 제거효율을 나타냈으며 이것은 컬럼 충진에 의한 GAC와 세슘과의 접촉에 따른 흡착에 의해 제거된 것으로 판단된다. 막에 의한 세슘 제거의 경우, 정밀여과막에 의해 거의 제거되지 않는 것으로 나타났으며 역삼투막에 의한 세슘의 제거율은 약 75%로 나타났다.

Table 6. Removal of cesium by granular activated carbon, sand, and membranes

Sample (Initial concentration)	Materials	Cs (μg/L)	Removal efficiency (%, avg.)
Cs (10 μg/L)	S-F	10.0	0
	MF	10.0	0
	RO	2.5	75
	GAC	4.1	59

* S-F : sand filtration

4. 결론

정수처리에서 용존성 방사성 세슘의 제거율을 살펴본 결과, 물속에서 세슘이 이온상태인 Cs^+ 로 존재하여 모래여과, 정수약품(PACI), 분말활성탄(PAC) 및 정수약품(PACI + PAC) 혼합주입에 의해 제거되지 않는 것으로 나타났다. 탁도 증가에 따른 세슘의 제거 실험결과, 탁도가 증가함에 따라 세슘 제거율이 증가하는 것으로 나타났으며, G-취수장 주변 고형물과 황토를 이용하여 탁도를 각각 74 NTU와 103 NTU로 조정했을 때 세슘의 약 56%, 51%가 제거되었다. 또한, 고도처리공정에서의 세슘의 제거효과를 검토하기 위해 탁도를 각각 74 NTU(취수장 주변 고형물)와 103 NTU(황토)로 조정한 후 상징수를 채취하여 GAC로 여과한 결과, 세슘의 약 80%가 제거되어 세슘의 80% 이상 제거를 위해서는 황토 등 고형물을 이용하여 원수 탁도를 80 NTU 이상으로 조정해야 하는 것으로 나타났다. GAC에 의한 세슘 제거의 경우, 약 60%가 제거됨을 알 수 있었으며 이것은 접촉에 따른 흡착에 의해 제거된 것으로 판단된다. 막에 의한 세슘 제거는 정밀여과막에 의해서는 제거되지 않았으며 역삼투막에서는 75%가 제거되었다.

따라서 방사성 세슘 누출 사고시, 1) 고도정수처리공정이 도입되지 않은 표준정수처리에서 세슘의 효과적인 제거를 위해서는 황토 등 고형물을 투입하여 원수 탁도를 80 NTU 이상으로 조정하여 혼화-응집-침전공정에서 세슘을 최대한 제거토록 운영해야 하며, 2) 고도정수처리공정이 도입된 경우, 착수정에 고형물을 원수에 투입할 수 있는 사일로 등의 시설을 설치하여 원수 탁도를 80 NTU 이상으로 조정하여 혼화-응집-침전과정에서 세슘을 최대한 제거한 후 입상활성탄 공정에서 나머지 세슘을 제거하는 것이 가장 합리적인 정수처리 운영방법이라고 판단된다.

KSEE

References

1. Zhang, C. P., Gu, P., Zhao, J., Zhang, D. and Deng, Y., "Research on the treatment of liquid waste containing cesium by an adsorption-microfiltration process with potassium zinc hexacyanoferrate," *J. Hazard. Mater.*, **167**(1), 1057~1062 (2009).
2. Gaur, S., "Determination of Cs-137 in environmental water by ion-exchange chromatography," *J. Chromatogr.*, **A 733**(1), 57~71(1996).
3. Wong, C. T. and Mullins, J. W., "Part 7000, Radioactivity," *Am. Water Works Assoc.*, 21st Ed., 7-24~7-29(2005).
4. Goossens, R., Delville, A., Genot, J., Halleux, R. and Masschelein, W. J., "Removal of the typical isotopes of the chernobyl fall-out by conventional water treatment," *Water Res.*, **23**(6), 693~697(1989).
5. Kosaka, K., Asami, M., Kobashigawa, N. and Ohkubo, K.,

- “Removal of radioactive iodine and cesium in water purification processes after an explosion at a nuclear power plant due to the great japan Earthquake,” *Water Res.*, **46**(14), 4397~4404(2012).
6. Shakir, K., Sohsah, M. and Soliman, M., “Removal of cesium from aqueous solutions and radioactive waste simulants by coprecipitate flotation,” *Sep. Purific. Technol.*, **54**(3), 373~381(2007).
7. Morton, R. J. and Straub, C. P., “Removal of radionuclides from water by water treatment processes,” *J. Am. Water Works Assoc.*, **48**(5), 545~558(1956).
8. Kozai, N., Suzuki, S., Aoyagi, N., Sakamoto, F. and Ohnuki, T., “Radioactive fallout cesium in sewage sludge ash produced after the Fukushima Daiichi nuclear accident,” *Water Res.*, **68**, 616~626(2015).
9. Gafvert, T., Ellmark, C. and Holm, E., “Removal of radionuclides at a waterworks,” *J. Environ. Radioact.*, **63**(2), 105~115(2002).
10. Soliman, M. A., Rashad, G. M. and Mahmoudb, M. R., “Fast and efficient cesium removal from simulated radioactive liquid waste by an isotope dilution-precipitate flotation process,” *Chem. Eng. J.*, **275**, 342~350(2015).
11. Kamaraj, R. and Vasudevan, S., “Evaluation of electro-coagulation process for the removal of strontium and cesium from aqueous solution,” *Chem. Eng. Res. Design*, **93**, 522~530 (2015).
12. Cornell, R. M., “Adsorption of cesium on minerals : a review,” *J. Radio-analytical and Nuclear Chem.*, **171**(2), 483~500(1993).
13. Staunton, S., “Adsorption of radio-caesium on various soils : interpretation and consequences of the effects of soil: solution ratio and solution composition on the distribution coefficient,” *Eur. J. Soil Sci.*, **45**, 409~418(1994).
14. Kobayashi, U., Ohzeki, S., Souda, H. and Yamamoto, H., “Basic experiment on removal of radionuclides in water,” *J. Jpn. Water Works Assoc.*, **417**, 389~395(1969).