물속의 인공방사성핵종(I-131) 제거율 연구 Study on Removal of Artificial Radionuclide (I-131) in Water

정관조[†] · 이경우 · 김복순 · 이수원 · 이종규 · 구아미
Gwanjo Jeong[†] · Kyungwoo Lee · Bogsoon Kim · Suwon Lee · Jonggyu Lee · Ami Koo

서울특별시 상수도연구원

Waterworks Research Institute, Seoul Metropolitan Government

(Received July 16, 2014; Revised November 7, 2014; Accepted November 17, 2014)

Abstract : Iodine-131, an artificial radionuclide, mostly exists as iodide ion ($^{131}\text{I}^-$) and iodate ion ($^{131}\text{IO}_3^-$) in the water, and When a short time contacted, it could not be removed by poly aluminum chloride (PACl) and powdered activated carbon (PAC). Although the removal rate of iodine-131 was not related with turbidity of raw water, it showed linear relationship with contact time with PAC. With the mixture of PACl (24 mg/L or more) and PAC (40 mg/L or more), about 40% of iodine-131 could be removed. Iodine-131 could be removed little by sand filtration, but approximately 100% by granular activated carbon (GAC), both virgin-GAC and spent-GAC. Microfiltration process could remove little iodine-131 while reverse osmosis process could remove about 92% of iodine-131.

Key Words : Iodine-131, Radionuclide, Granular Activated Carbon (GAC)

요약 : 인공방사성핵종 I-131은 물속에서 요오드 이온($^{131}\text{I}^-$), 요오드산염 이온($^{131}\text{IO}_3^-$) 등 대부분 이온상태로 존재했으며 접촉 시간이 짧을 경우, 정수약품(PACl)과 분말활성탄(PAC)에 의해 제거되지 않는 것으로 나타났다. 원수 탁도 증가에 따른 I-131의 제거 효과는 없었으나 분말활성탄과 I-131과의 접촉시간 증가에 따른 I-131의 제거율은 증가하는 것을 확인하였다. 혼합 주입(PACl + PAC)에 의한 I-131을 40% 이상 제거하기 위해서는 PACl 24 mg/L 이상, PAC 40 mg/L 이상을 주입해야 하는 것을 알 수 있었다. 모래여과에 의한 I-131은 제거되지 않는 것으로 나타났으며, 입상활성탄(GAC)에 의한 제거율은 신탄, 구탄 모두에서 최소검출한계 0.10 Bq/L 미만으로 거의 100% 제거됨을 알 수 있었다. 막에 의한 I-131의 제거율은 정밀여과막에 의해서는 제거되지 않았으며 역삼투막에서는 92%가 제거되었다.

주제어 : I-131, 방사성핵종, 입상활성탄

1. 서론

물속에 들어있는 방사성물질은 직접음용과 먹이 사슬을 통한 간접적인 방법으로 인체에 흡수될 수 있다. 흡수된 방사성물질의 양은 물속에 존재하는 양과 상관성이 있어 인체를 방사성물질로부터 보호하기 위해서는 먹는물 중의 방사성물질에 대한 정확한 측정뿐 만 아니라 제거방법에 대한 연구가 필요하다. 요오드는 갑상선 호르몬 성분으로 인간과 동물에 필수적인 원소이며 두 개의 자연 동위원소 I-127, I-129로 이루어진 환경 중에 흔하게 존재하는 물질이다. 그러나 I-131은 반감기가 8.05일로 자연 상태에는 존재하지 않고 우라늄 핵분열 과정에서 발생하며 핵사고 시 환경 중에 방출되는 매우 위험한 인공방사성핵종으로 1986년 4월 23일 체르노빌 원전사고 후 원전 주위에서 갑상선암 발병의 증가가 확인되었다.¹⁾ 이와 같이 환경 중에 존재하는 I-131의 주요한 원천은 과거 1945년부터 현재까지 핵무기 실험과 원전 및 핵연료 재처리 시설을 포함한 원자력 시설에서 기인하는 것으로 알려져 있다.^{1,2)} 2011년 3월 일본 대지진으로 도쿄 전력의 후쿠시마 다이치 원전 폭발이 발생하였으며 이로 인해 많은 양의 인공방사성핵종이 환경 중으로 방

출되었다. 핵사고 후 환경 중에 방출된 주요 방사성핵종은 Te-132(반감기, 77시간), Te-131(반감기, 24.8분) 그리고 그들의 딸핵인 I-131(반감기, 8.05일), Cs-134(반감기, 2.06년), Cs-137(반감기, 30년)이었으며 I-131이 원전 폭발 후 먹는 물에서 검출되었다.^{2,3)} 원전 사고 후 공기 중에 방출된 I-131은 지표수에 입자나 용존성, 콜로이드 형태로 존재하는 것으로 알려져 있으며,²⁾ 물속의 용존성 I-131은 방사성 요오드 이온($^{131}\text{I}^-$), 요오드 분자($^{131}\text{I}_2$), 차아요오드산(HO^{131}I), 요오드산염 이온($^{131}\text{IO}_3^-$) 및 유기성 요오드(R^{131}I)와 같은 다양한 형태로 분리된다. 이와 같이 I-131의 존재 형태는 지표수의 수질 특성에 따라 다르며 지표수에서의 다양한 반응으로 존재 형태의 변화가 발생한다. 즉, 요오드 이온($^{131}\text{I}^-$)과 유기성 요오드(R^{131}I)는 차아요오드산(HO^{131}I)이 천연 유기물질(natural organic matter, NOM)과 반응할 때 형성되며, 요오드 이온($^{131}\text{I}^-$)은 햇빛과 반응하여 지표수에서 요오드산염 이온($^{131}\text{IO}_3^-$)으로 변화하며 정수처리과정에서 염소와 반응하여 차아요오드산(HO^{131}I)으로 변환된다.^{2,4)} 따라서 정수처리에서 I-131의 제거효율은 물속에 존재하는 I-131의 존재 형태에 따라 다르게 나타날 수 있다. Morton 등⁵⁾은 응집제(poly aluminum chloride, PACl)와 분말활성탄(powdered

[†] Corresponding author E-mail: jgj730@seoul.go.kr Tel: 02-3146-1751 Fax: 02-3146-1874

activated carbon, PAC)을 이용한 정수처리에서 I-131의 제거에 대한 연구를 실시하였으며 물속에 요오드가 이온상태로 존재할 때 제거 되지 않는 것으로 보고하고 있다. 또한 Goossensa 등¹⁾은 표준정수처리에서 방사성물질 최대 제거율은 I-131과 Cs-134가 각각 17%, 56%라고 보고했으며, Koji 등^{1,6)}은 I-131은 입상활성탄(granular activated carbon, GAC)과 분말활성탄(PAC)에 의해 일부 사례를 제외하고 약 30%~40% 제거된다고 보고했다. 그러나 Morton 등⁵⁾ 많은 방사성물질 관련 연구의 경우, 특정한 방사성핵종 즉, 요오드 이온(¹³¹I)을 사용하여 이루어졌으며, I-131의 제거율은 지역별 수질 특성에 따라 존재 형태가 다르므로 요오드 이온(¹³¹I)과 다르게 나타날 수 있다. Summer 등^{7,8)}에 의하면 PAC에 의한 요오드 이온(¹³¹I)의 제거율은 매우 낮으나 I-131의 다른 형태 즉, 유기성 요오드(R-¹³¹I)는 PAC에 의해 제거되는 것으로 보고하고 있다. 이와 같이 물속의 I-131의 제거를 위해서는 원수 중에 존재하는 I-131의 존재형태에 대한 정보가 매우 중요하며 이에 따른 실태 및 제거율 연구가 필요하다.

이에 본 연구에서는 핵실험 및 원전 사고 시 방출되는 I-131에 대해 서울시 원수, 정수에서의 존재형태와 실태조사를 실시하고 정수처리에 사용되고 있는 정수약품, 활성탄, 여과막에 의한 제거율 연구를 통해 합리적인 제거방법을 도출하여 유사시 방사능 사고에 적극 대처하고자 실시하였다.

2. 실험방법

2.1. 시료채취 및 전처리

2012년 2월부터 2013년 12월까지 2년 동안 I-131의 실태조사를 위해 매월 서울시 취수장(팔당, 강북, 암사, 구의, 자양, 풍납) 원수 6점, 아리수정수센터(광암, 강북, 암사, 구의, 뚝도, 영등포) 정수 6점, 수도물 1점을 채취하였다. I-131의 제거율 연구를 위한 시료 채취는 실험조건 설정에 따라 이루어졌으며, I-131을 포함하고 있는 A-지역 시료를 시험용액으로 사용하였다. 또한 시료 중 I-131의 용존 및 입자의 존재형태를 확인하기 위해 채취한 시료를 0.45 μ m 필터를 이용하여 2 L을 여과하였다.

* A-지역 : 서울시 상수원 지역이 아닌 특정시설이 존재하는 지역

Fig. 1. Energy calibration curve.

2.2. 방사선 표준물질

분석에 사용된 시료 용기는 1 L 마리넬리 비이커(marinelli beaker)를 사용하였으며 10% 질산(HNO₃, Aldrich, USA)에 20분 정도 처리하여 불순물을 제거한 후 탈이온수로 세척하여 사용하였다. I-131 분석을 위한 방사선 선원으로는 한국표준과학연구원(KRISS)에서 조제한 10개(Am-241, Cd-109, Co-57, Ce-139, Cr-51, Sn-113, Sr-85, Cs-137, Co-60, Y-88)의 인공방사성핵종이 혼합되어 있는 인증표준물질(CRM, 1 L marinelli beaker)인 약 50,000 Bq/L 혼합 선원을 사용하였다.

2.3. 분석기기

I-131의 감마선 측정을 위한 분석기기로는 Canberra사 HPGe gamma-ray spectrometer (GC4018, USA)를 사용하였다. 검출기는 고순도 게르마늄 검출기를 사용하였고, 상대효율은 40%, 검출기 전압은 3,000 V, 분석시간은 80,000 sec, 시료는 1 L을 사용하였다. Table 1, 2에 I-131의 분석 특성과 조건을 나타내었으며, Fig. 1, 2에 에너지 및 효율교정 곡선을 나타내었다. 에너지교정은 채널 대비 에너지비를 맞추어 감마선헤중에 대한 정확한 정성분석을 가능하게 한다. Fig. 1에서 나타난 바와 같이 Energy (keV) = -2.127e-001 keV + 3.665e-001ch-6.729e-008ch²에서 ch² 값이 10⁻⁷ 이하로 우수한 직선성

Table 1. Characteristic of iodine-131

Element	Mass number	Energy (eV)	MDA (Bq/L)
I	131	80,6, 177,2, 284,3, 325,7, 364,4, 502,9, 639,9, 642,7, 722,8	0,10

* MDA : minimum detectable activity

Table 2. Operating conditions of HPGe gamma-ray spectrometer

Parameter	Setting/Type
HPGe Gamma-ray spectrometer	Canberra GC4018
Multi channel analyzer	DSA-1000
Detector voltage	3,000 V
Detector	HPGe
Relative efficiency	40%
Sample size	1,0 L
Measurement time	80,000 sec
Nuclide	I-131
Reference material (CRM)	Am-241, Cd-109, Co-57, Ce-139, Cr-51, Sn-113, Sr-85, Cs-137, Co-60, Y-88

Fig. 2. Dual efficiency calibration curve.

Fig. 3. Jar-Tester.

Table 3. Operating conditions of jar-test

Jar-tester	Stirring speed	Stirring time
SCJ-100 (Kynel, com.)	150 rpm	1 min
	65 rpm	5 min
	55 rpm	5 min
	40 rpm	5 min
Settling time		30 min

을 나타내었다. 효율교정은 정성 분석된 방사성핵종에 대한 정확한 방사능 값(정량분석)을 구하기 위해 실시하며, 측정된 값과 함수식에 의해 구해진 값과의 오차가 모두 $\pm 5\%$ 미만으로 우수한 효율곡선을 나타내었다.

2.4. 실험조건

I-131의 제거율 실험을 위한 시료는 A-지역 시료를 사용하였고, 정수약품(PACI), 분말활성탄(PAC), 정수약품과 분말활성탄 혼합(PACI + PAC) 주입, 입상활성탄(GAC), 여과막에 의한 I-131의 제거율 실험을 실시하였다. 정수약품과 분말활성탄을 이용한 제거율 실험은 자-시험(jar-test)으로 실시하였으며, 실험조건은 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 감마선을 측정하였다. 입상활성탄에 의한 제거율 실험은 사용 중인 입상활성탄에 존재할 수 있는 미생물, 점액질 등 다양한 요소에 의한 영향을 고려하여 신탄과 사용 중인 구탄, 2가지 입상활성탄에 대해 실시하였으며 구탄은 Y-아리수정수센터의 입상활성탄 여과지에서 채취하였다. 막에 의한 제거율 실험은 시판되고 있는 W사 정밀여과막(microfiltration membrane, MF)과 역삼투막(reverse osmosis membrane, RO)을 구매하여 실시하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 원 · 정수에서의 실태조사

2012년 2월부터 2013년 12월까지 I-131에 대한 실태조사를 위해, 서울시 취수장 원수 138점, 아리수정수센터 정수 138점, 수도물 23점 등 총 299점을 채취하여 I-131에 대한 실태조사를 실시한 결과는 Table 4와 같다.

Table 4. The results of iodine-131 analysis in water (unit: Bq/L)

Radionuclide	Raw water	Finished water	Tap water
I-131	< 0.10	< 0.10	< 0.10

* Bq : Becquerel

Table 5. The results of gamma-ray measurement for iodine-131 in pre and post filtration samples (unit: Bq/L)

Samples	Pre-filtration	Post-filtration
Sample - 1	0.98 ± 0.03	0.93 ± 0.03
- 2	1.83 ± 0.05	1.80 ± 0.05
- 3	1.30 ± 0.05	1.21 ± 0.05
A-area		
- 4	1.25 ± 0.04	1.22 ± 0.04
- 5	1.01 ± 0.03	0.97 ± 0.03
- 6	2.01 ± 0.05	1.94 ± 0.05

Table 4와 같이, I-131은 최소검출한계 0.10 Bq/L 미만으로 불검출 되어 서울시 원 · 정수 및 수도물이 I-131에 안전한 것으로 나타났다.

3.2. 물속에서의 존재 형태

I-131의 제거율 실험결과와 해석을 위해, 시료 중에 존재하는 I-131의 용존 및 입자의 존재형태 확인 실험을 실시하였다. I-131을 함유하고 있는 A-지역 시료를 채취하여 진공펌프의 압력을 낮은 진공(-0.2 bar)으로 조정후 0.45 μm 필터를 사용하여 1 L을 여과했으며, HPGe gamma-ray spectrometer를 사용하여 여과 전 · 후의 I-131의 감마선을 측정하였다. Table 5에 여과 전 · 후의 I-131의 감마선 측정결과를 나타내었다.

Table 5에 나타난 바와 같이, A-지역 시료에 존재하는 I-131은 대부분 용존성 요오드, 즉 요오드 이온($^{131}\text{I}^-$), 요오드산염 이온($^{131}\text{IO}_3^-$) 등 이온상태로 존재하는 것으로 나타났다. 따라서 Kosaka 등의 연구결과와 같이 혼화-응집, 입상 및 분말활성탄에 대해 낮은 제거율을 나타낼 것으로 예상되었다.

3.3. 인공방사성핵종(I-131) 제거율

3.3.1. 정수약품(PACI)에 의한 제거

PACI 주입에 의한 I-131 제거율 실험은 Table 3과 같은 조건의 자-시험으로 실시하였다. PACI의 주입량은 일반적인 정수처리공정 운영에서 최대 주입 가능한 30 mg/L을 기준으로 4 mg/L 간격으로 증가시키면서 0~28 mg/L 범위에서 I-131 제거율 변화를 관찰하였다. 사용된 시험용액의 I-131 농도는 0.90 Bq/L이었으며, Table 6에 PACI 주입 변화에 따른 I-131의 제거율 실험결과를 나타내었다.

실험결과, Table 6과 같이 PACI에 의한 I-131의 제거율은 거의 없는 것으로 나타났다. 이것은 시험용액 중에 존재하는 I-131이 이온상태인 요오드 이온($^{131}\text{I}^-$), 요오드산염 이온($^{131}\text{IO}_3^-$)으로 존재하여 PACI에 의해 제거되지 않는 것으로 Morton 등의 연구결과와 동일한 결과를 나타냈다.

Table 6. Removal of iodine-131 by poly aluminum chloride
(unit: Bq/L)

Jar-test	PACl (mg/L)	I-131	Removal efficiency (%)
I-131 (0.90 Bq/L)	0	0.90±0.03	0.0
	8	0.85±0.03	5.6
	12	0.85±0.03	5.6
	16	0.85±0.04	5.6
	20	0.85±0.03	5.6
	24	0.84±0.03	6.7
	28	0.84±0.03	6.7

Table 7. Removal of iodine-131 for turbidity increment
(unit: Bq/L)

Jar-test	Turbidity (NTU)	I-131	Removal efficiency (%)
I-131 (1.67 Bq/L)	10.1	1.67±0.04	0
	19.7	1.67±0.04	0
	34.6	1.67±0.04	0
	48.9	1.66±0.04	0
	76.8	1.67±0.04	0

3.3.2. 탁도 증가에 의한 제거

원수 탁도 증가가 I-131 제거율에 미치는 영향을 검토하기 위해, A-지역 시료(2.9 NTU) 20 L와 주변 고형물 0.5 kg을 채취하였다. A-지역 시료를 바탕시료로 고형물을 첨가하여 탁도를 10.1, 19.7, 34.6, 48.9, 76.8 NTU로 증가시켰다. 탁도를 조정된 시료에 PACl(정수약품, 응집제)을 12 mg/L(Y-아리수정수센터 PACl 연 평균 주입농도) 주입하고, Table 3에 나타낸 조건으로 자-시험을 실시하였다. Table 7에 탁도 증가에 따른 I-131의 제거율 변화를 나타내었다.

Staunton과 Cornell에 의하면 탁도가 0, 5, 10, 30도(°) 일 때 Cs-134의 제거율은 5%, 56%, 67%, 92%이고 Cs-137은 6%, 60%, 73%, 91%로 시료 중에 탁도 성분이 증가할수록 세습이 입자성분에 흡착되어 혼화-응집-침전 과정에서 세습 제거율이 증가하는 것으로 보고하고 있다.^{9,10)} 그러나 I-131의 경우, Table 7과 같이 탁도가 10.1, 19.7, 34.6, 48.9, 76.8 NTU로 증가할 때 I-131은 거의 제거되지 않는 것으로 나타났다(1° ≒ 1.8 NTU). 이것은 물속에 존재하는 I-131의 다양한 이온상태, 즉 요오드 이온(¹³¹I⁻), 요오드산염 이온(¹³¹IO₃⁻) 등은 세습이온(Cs⁺)과 다르게 탁도 입자성분에 흡착되지 않는 것을 확인할 수 있었다.

3.3.3. 분말활성탄(PAC)에 의한 제거

I-131 제거율 실험에 사용된 PAC는 유효입경이 0.35~0.45 μm인 석탄계와 목탄계(야자계)를 1:1로 혼합한 혼합-분말 활성탄을 사용하였다. 시험용액의 I-131 농도는 1.40 Bq/L이었으며, PACl 12 mg/L을 주입한 후 PAC를 10 mg/L 간격으로 50 mg/L까지 증가시키면서 Table 3과 같은 자-시험 조건으로 I-131의 제거율을 고찰하였다. 일반적인 정수처리 공정 운영에서 주입 가능한 분말활성탄의 최대 주입농도는

Table 8. Removal of iodine-131 by powdered activated carbon
(unit: Bq/L)

Jar-test	PACl (mg/L)	PAC (mg/L)	I-131	Removal efficiency (%)
I-131 (1.40 Bq/L)	12	0	1.40±0.05	0.0
		10	1.39±0.04	0.7
		20	1.39±0.04	0.7
		30	1.39±0.04	0.7
		40	1.39±0.04	0.7
		50	1.38±0.04	1.4

정수처리 시설에 따라 다소 차이는 있으나 약 40~50 mg/L이다. Table 8에 PAC 주입 변화에 따른 I-131 제거율 실험결과를 나타내었다.

실험결과, Table 8에 나타낸 바와 같이 PAC에 의한 I-131 제거율은 거의 없는 것으로 나타났다. 이것은 Koji Kosaka 등이 I-131은 PAC에 의해 일부 사례를 제외하고 약 30%~40% 제거된다는 연구결과와 다른 결과를 나타냈다. 이와 같은 연구결과는 실험조건(접촉시간, PAC 투입량 등) 차이에 의한 PAC와 시료 중에 존재하는 I-131과의 접촉효율 차이로 예측되었다. 따라서 PAC와 I-131과의 접촉시간 증가 및 PAC 주입량 증가에 따른 제거율 변화를 고찰하였다. 접촉시간은 방사성물질 유입 사고 시 Y-아리수정수센터 내의 PAC 주입 지점인 착수정이 아닌 취수장 또는 도수관로에서 PAC와 PACl 주입의 경우를 가정하여 최대 3 시간으로 실험하였으며, Table 8의 실험조건과 동일하게 자-시험을 실시한 후 40 rpm으로 2 h 동안 완속교반을 실시하였고, 30 min 정치 후 상정수를 채취하여 I-131의 감마선을 측정하였다. Table 9에 PAC 주입량 및 접촉시간 증가에 따른 I-131 제거율 변화를 나타내었다.

Table 9에 나타낸 바와 같이, PAC 주입량이 10, 20, 30, 40, 50, 100 mg/L으로 증가함에 따라 I-131의 제거율도 27%, 53%, 53%, 60%, 63%, 68%로 증가되는 것으로 나타나 PAC 주입량과 접촉시간 증가가 I-131 제거율에 영향을 주는 것을 확인할 수 있었다. 따라서 표준정수처리에서 방사성물질 유입 사고 시 I-131의 60% 이상 제거를 위해서는 약 50 mg/L의 PAC 주입과 3시간 이상의 접촉시간(혼화-응집)이 필요함을 알 수 있었으며, I-131을 70% 이상의 제거를 위해서는 100 mg/L 이상의 PAC 주입이 필요함을 확인할 수 있었다. 그러

Table 9. Removal of iodine-131 by powdered activated carbon after contact time increment
(unit: Bq/L)

Jar-test	PACl (mg/L)	PAC (mg/L)	I-131	Removal efficiency (%)
I-131 (0.37 Bq/L)	12	10	0.27±0.02	27.0
		20	0.27±0.02	52.6
		30	0.27±0.02	52.6
		40	0.23±0.02	59.6
		50	0.21±0.02	63.2
		100	0.18±0.02	68.4

Table 10. Removal of iodine-131 by mixed injection (PACI+PAC)
 (unit: Bq/L)

Jar-test	PACI (mg/L)	PAC (mg/L)	I-131	Removal efficiency (%)
I-131 (1.83 Bq/L)	0	0	1.83±0.05	0.0
	8	0	1.68±0.04	8.2
	12	10	1.57±0.04	14.2
	16	20	1.54±0.04	15.8
	20	30	1.33±0.04	27.3
	24	40	1.10±0.04	39.9
	28	50	1.09±0.04	44.4

나 착수정에서의 고농도(50 mg/L 이상) PAC 주입은 여과지 폐쇄 및 PAC 유출과 같은 정수처리 운영상 문제를 발생하므로 방사성물질 유입과 같은 비상 시 불가피하게 운영할 경우를 제외한 고농도 PAC 주입은 적절하지 못한 것으로 판단된다.

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

표준정수처리공정에서 수처리제 혼합주입에 의한 I-131 제거 효과를 검토하기 위해 먼저 PAC를 0~50 mg/L에서 10 mg/L 간격으로 자-용기에 주입하고, 150 rpm으로 3분 동안 급속 교반하여 분말활성탄과 I-131과의 접촉효율을 증가시켰다. 이후 5분간 정지한 후 Table 3의 자-시험 조건으로 PACI를 0~28 mg/L 범위에서 4 mg/L 간격으로 증가시켜 주입하면서 I-131의 제거율 변화를 고찰하였다. 이때 시험용액의 I-131 농도는 1.83 Bq/L이었다. Table 10에 혼합주입에 따른 I-131의 제거율 변화를 나타내었다.

실험결과, Table 10과 같이 I-131의 40% 이상 제거를 위해서는 PACI 24 mg/L 이상, PAC 40 mg/L 이상을 혼합하여 주입해야 하는 것으로 나타났다. 또한 고도정수처리가 도입되지 않는 표준정수처리에서 I-131을 50% 이상 제거하기 위해서는 최소 PACI 30 mg/L 이상과 PAC 50 mg/L 이상 혼합처리가 필요한 것으로 나타났다.

3.3.5. 입상활성탄(GAC), 막(MF, RO)에 의한 제거

입상활성탄에 의한 I-131의 제거율은 사용 중인 입상활성탄에 존재하는 미생물 등의 영향을 고려하여 신탄과 구탄, 2가지 입상활성탄을 사용하였다. 실험에 사용한 입상활성탄은 균등계수 1.64, 유효입경 0.92 mm인 석탄계 입상활성탄으로 신탄, 구탄 모두 Y-아리수정수센터에서 사용하는 석탄계 입상활성탄을 사용하였다. 실험조건은 Y-아리수정수센터의 입상활성탄 여과지 운영조건(체류시간 20 min)과 동일하게 실시하였다. 또한 I-131의 제거 기작이 여과기능 또는 흡착기능에 의한 것인지를 확인하기 위해 Y-아리수정수센터 모래여과지의 모래를 채취하여 여과 실험을 실시하였다. 막에 의한 I-131의 제거율은 W사 정밀여과막(MF)과 역삼투막(RO)을 사용하였고, 0.5 kW(약 30 L/min) 펌프를 사용하여

Fig. 4. Pilot plant for GAC test.

Table 11. Removal of iodine-131 by granular activated carbon, sand, and membranes
 (unit: Bq/L)

Sample	Membrane	I-131	Removal efficiency (%)
I-131 (1.30 Bq/L)	S-F	1.30±0.04	0.0
	MF	1.30±0.04	0.0
	RO	0.10±0.01	92.3
	V-GAC	< 0.10	100
	S-GAC	< 0.10	100

* S-F : sand filtration, V-GAC : virgin-GAC, S-GAC : spent-GAC

시료를 막에 주입하였다. Table 11에 모래, 막 종류 및 GAC에 의한 I-131의 제거율 실험결과를 나타내었다.

실험결과, Table 11과 같이 모래여과(S-F)에 의한 I-131은 거의 제거되지 않는 것으로 나타났다. 이것은 시험용액에 존재하는 I-131이 대부분 이온상태로 존재하여 모래여과에 의해 제거되지 않는 것으로 추정된다. GAC에 의한 제거율의 경우, I-131은 신탄 및 구탄 모두에서 최소검출한계 0.10 Bq/L 미만으로 거의 100% 제거되었으며, 이것은 컬럼 충전에 의한 GAC와 I-131와의 접촉효율이 PAC에 비해 커서 여과보다는 활성탄의 흡착에 의해 높은 제거효율을 나타낸 것으로 판단된다. 막에 의한 I-131 제거의 경우, 정밀여과막에 의해 거의 제거되지 않는 것으로 나타났으며 역삼투막에 의한 I-131의 제거율은 약 92%로 나타났다.

4. 결론

본 연구에서는 인공방사성핵종 I-131에 대해 서울시 원·정수 및 수돗물에서의 실태조사 및 제거율 연구를 실시하였다. 실태조사 결과, I-131은 모든 시료에서 MDA 0.10 Bq/L 미만으로 불검출 되어 서울시 원·정수 및 수돗물은 I-131에 안전한 것으로 나타났다. I-131 제거의 경우, 물속에서 요오드 이온($^{131}\text{I}^-$), 요오드산염 이온($^{131}\text{IO}_3^-$) 등 대부분 이온상태로 존재하여 모래여과, 정수약품(PACI) 및 분말활성탄(PAC)에 의해 제거되지 않는 것으로 나타났다. 그러나 분말활성탄 주입량 및 접촉시간 증가에 따른 I-131의 제거율은 증가하는 것으로 나타났으며, 원수 탁도 증가에 따른 I-131의 제거효과는 없는 것을 확인하였다. 혼합주입(PACI +

PAC)에 의한 제거의 경우, PACI 24 mg/L과 PAC 40 mg/L을 혼합 주입할 때, 약 40%가 제거되는 것을 알 수 있었다. GAC에 의한 제거율의 경우, 신탄, 구탄 모두에서 최소검출한계 0.10 Bq/L 미만으로 거의 100% 제거됨을 알 수 있었으며 이것은 컬럼 충진에 의한 GAC와 I-131과의 접촉 효율이 PAC에 비해 매우 커서 여과가 아닌 활성탄 흡착에 의해 높은 제거효율을 나타낸 것으로 판단된다. 막에 의한 제거율은 정밀여과막에 의해서는 제거되지 않았으며 역삼투막에서는 92%가 제거되었다. 따라서 방사성물질 오염 사고 시, 1) 고도정수처리공정이 도입되지 않은 표준정수처리에서 I-131의 효율적인 제거를 위해서는 착수정 유입 유량을 줄이거나 취수장 또는 도수관로에 PAC와 PACI를 주입하여 분말활성탄과 물속의 I-131과의 접촉시간을 증가시켜 혼화-응집-침전공정에서 I-131을 최대한 제거토록 운영해야 하며, 2) 고도정수처리공정이 도입된 경우, 착수정 유입 유량을 줄여 분말활성탄과 물속의 I-131과의 접촉시간을 증가시켜 혼화-응집-침전공정에서 I-131을 최대한 제거한 후 입상활성탄 공정에서 나머지 I-131을 제거하는 것이 가장 합리적인 정수처리 운영방법이라 판단된다.

KSEE

References

1. 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).
2. 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**, 4397~4404 (2012).
3. Wong, C. T. and Mullins, J. W., "Part 7000, Radioactivity," *Am. Water Works Assoc.*, 21st Ed., pp. 7-24~7-29(2005).
4. 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).
5. Morton, R. J. and Straub, C. P., "Removal of radionuclides from water by water treatment processes," *J. Am. Water Works Assoc.*, **12**, 545~557(1955).
6. Tagami, K. and Uchida, S., "Can we remove iodine-131 from tap water in Japan by boiling?-Experimental testing in response to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident," *Chemosphere*, **84**, 1282~1284(2011).
7. Summers, R. S., Fuchs, F. and Sontheimer, H., "The fate and removal of radioactive iodine in the aquatic environment. In: Aquatic Humic Substances," *Chapter*, **35**, 623~636(1988).
8. Morita, T., Niwa, K., Fujimoto, K., Kasai, H. and Yamada, H., "Detection and activity of iodine-131 in brown algae collected in the Japanese coastal areas," *Sci. Total Environ.*, **408**, 3443~3447(2010).
9. Staunton, S., "Adsorption of radiocaesium 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).
10. Bichsel, Y. and Von Gunten, U., "Oxidation of iodide and hypiodous acid in the disinfection of natural waters," *Environ. Sci. Technol.*, **33**, 4040~4045(1999).