

미세조류를 이용한 사용후핵연료 저장조에서 배출되는 방사성 폐액에 함유된 Cs-137 및 Sr-90 제염에 관한 연구

§김태영 · 박혜민 · 송양수 · 이운장

㈜오리온이엔씨 기술연구소

A Study on the Decontamination of Cs-137 and Sr-90 Contained in the Liquid Radioactive Waste Discharged from the Spent Fuel Storage Tank Using Microalgae

§Tae Young Kim, Hye Min Park, Yang Soo Song and Un Jang Lee

OrionEnC Co., LTD., 37, Seongsui-ro 22-gil, Seongdong-gu, Seoul 04798, Korea

요 약

본 연구에서는 방사성 폐액내 포함된 방사성 핵종인 세슘-137(Cs-137) 및 스트론튬-90(Sr-90)의 친환경적인 제염을 위해 미세조류의 적용 가능성을 평가하였다. Cs-137 및 Sr-90이 각각 함유된 일원계 표준 방사성 용액과 3차 증류수를 희석하여 1.5 Bq/mL Cs-137, 1.0 Bq/mL Sr-90 농도로 제조한 뒤 실험에 사용하였다. 미세조류는 2종을 사용했으며, Sr-90 제염에는 *Chlorella Vulgaris*를 사용하였고, Cs-137 제염에는 *Hematococcus pluvialis*를 사용하여 실험을 수행하였다. 실험 방법은 2주 간 배양된 미세조류를 반투과막이 부착된 병에 투입한 뒤, 미세조류가 투입된 병을 제조된 방사성 용액에 투입하여, 반투과막을 통해 미세조류와 방사성 용액이 48 시간 동안 반응하도록 하였다. 각 시료에 대한 방사능 농도 분석은 γ 선 동위원소인 Cs-137은 감마선 핵종 분석기를 사용하였고, β 선 동위원소인 Sr-90은 액체섬광계수기(LSC: Liquid Scintillation Count)를 사용하였다. 실험 결과, Cs-137은 약 88.0 %, Sr-90은 약 89.7 % 제염이 가능함을 확인하였으며, Sr-90은 2단 제염 방법에 의해 최종적으로 약 98.6 % 제염이 가능하였다.

주제어 : 미세조류, 사용후핵연료, 세슘, 스트론튬, 제염

Abstract

In this study, the applicability of microalgae was evaluated for eco-friendly decontamination of cesium-137 (Cs-137) and strontium-90 (Sr-90), which are radioactive nuclides contained in radioactive waste. The monolithic radioactive solution used in the experiment was manufactured at a concentration of 1.5 Bq/mL Cs-137 and 1.0 Bq/mL Sr-90 by diluting a standard radioactive solution and distilled water. This experiment used two types of microalgae, *Chlorella Vulgaris* was used for Sr-90 decontamination and *Hematococcus pluvialis* for Cs-137 decontamination. The experimental method is to put the microalgae cultured for 2 weeks into a bottle with a semi-permeable membrane, and then put the bottle in which the microalgae was put into the manufactured radioactive solution, so that the microalgae and the radioactive solution react through the semi-permeable membrane for 48 hours. For the radioactivity concentration analysis of each sample, a gamma-ray nuclide analyzer was used for

· Received : August 5, 2022 · Revised : September 22, 2022 · Accepted : September 27, 2022

§ Corresponding Author : Tae Young Kim (E-mail : tykim@orionenc.com)

Technology Research Center, OrionEnC Co., Ltd., 37, Seongsui-ro 22-gil, Seongdong-gu, Seoul 04798, Korea

©The Korean Institute of Resources Recycling. All rights reserved. This is an open-access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0/>), which permits unrestricted non-commercial use, distribution and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

Cs-137, a γ -ray isotope, and a Liquid Scintillation Count(LSC) was used for Sr-90, a β -ray isotope. As a result of the experiment, it was confirmed that about 88.0 % of Cs-137 and about 89.7 % of Sr-90 could be decontaminated, and about 98.6 % of Sr-90 was finally able to be decontaminated by the two-stage decontamination method.

Key words : Microalgae, Spent Nuclear Fuel, Cesium, Strontium, Decontamination

1. 서 론

2022년 기준, 전세계적으로 원자력 발전소는 30개국에서 총 449기가 가동 중이고, 전 세계 총 에너지 생산량의 11 %를 차지하고 있다^{1,2)}. 원자력발전의 장점으로 평가할 수 있는 대표적인 요소는 지구온난화의 주요 원인인 탄소화합물(COx) 배출량이 석탄발전의 0.1 % 수준에 불과하고, 황산화물(SOx), 질소산화물(NOx)의 배출량 또한 미미하기 때문에 기후변화에 대응할 수 있는 최선의 에너지원이라는 점이다. 또한 연료비 단가가 석탄에 비하면 31 %, LNG에 비하면 8 % 수준에 불과하고, 우라늄 가격도 2019년 기준 25.61 \$/lb로 저렴한 광물에 속하여 경제성이 우수하다³⁾. 경제, 산업이 성장함에 따라 에너지 수요는 증가할 것이고, 지속적으로 원자력 발전에 의한 에너지 생산량은 증가할 것으로 기대된다. 최근 유럽에서 지속가능한 발전을 모색하기 위해 독일을 중심으로 제정한 그린텍소노미(Green Taxonomy)가 이슈화되고 있다. 그린텍소노미는 에너지원의 친환경여부를 판단하는 기준으로 그동안 원자력은 해당되지 않았지만, 2022년 7월에 유럽연합 의회를 통과함으로써 원자력이 녹색에너지로 분류되게 되었다. 하지만 원자력 발전의 단점으로 제시되는 핵연료 이용과정에서 발생하는 방사성폐기물의 친환경적, 고효율 제염 기술 개발이 시급한 실정이다. 현재 2021

년 4분기 기준 전국 원자력발전소 내 사용후핵연료 저장량은 50만 7748다발이며, 전체 저장용량(51만 7460다발)의 약 98.1 %에 달하는 양이다⁴⁾. 현재까지 개발된 방사성 물질을 제거할 수 있는 대표적인 제염 기술은 전기투석법⁵⁾, 증발농축법⁶⁾, 침전법⁷⁾, 이온교환⁸⁾, 용매추출법⁹⁾, 흡착법¹⁰⁾ 등의 다양한 방법이 발표되었으나, 상대적으로 비용이 많이 발생하고, 조작이 복잡하며, 2차 오염이 발생 등의 문제점이 존재한다. 하지만 미세조류에 의한 제염기술의 경우, 미세조류의 대량 배양이 쉽게 가능하여 대규모 사고 시에도 적용이 가능하고, 미세조류를 대용량 방사성 오염수 탱크에 직접 투입하여 방사능 물질을 제염 시설로의 이동 없이 현장에서 즉시 제염이 가능하다는 장점이 있다. 따라서 실제 후쿠시마 사고와 같은 대규모 방사능 오염수에 적용할 수 있는 현실적인 기술이다. 또한 친환경적이며, 2차 오염의 발생이 없고, 배양 비용이 저렴하여 상용화 가치가 있는 기술로 주목 받고 있다. 한편, 방사능 누출 사고 시, 주로 누출되는 핵종들에 대하여 생성원별 구분 및 반감기를 Table 1에 나타내었는데, 반감기가 상대적으로 긴 핵종은 Cs-137, Sr-90임을 확인할 수 있다. 해당 핵종은 인공방사성핵종으로 분류되며 원전에서 유출될 경우, 자연적으로 제염되는데 긴 시간이 필요하다는 것을 의미한다.

또한, Cs-137 및 Sr-90이 인체로 유입될 경우, 근육과 뼈에 침적되게 되며, 각종 장기에 암을 유발하는 것으로

Table 1. Classifying Nuclides And Half-Life Of Nuclides

Classification	Source of origin	Major source of production	Nuclide name	Half life	Emitted Radiation
Artificial Radionuclide	Nuclear effluent from nuclear power plants	Neutron activation	H-3	12.3 years	β
			Corrosion products (Atomic pile/Cooling system)	Co-60	
		Fe-59		44.5 days	
		Cr-51		27.7 days	
		Nuclear fission products (Nuclear Fuel)	Sr-90	28.8 years	β
			Kr-85	10.8 years	
			I-131	8.02 days	γ
Cs-137	30.1 years				

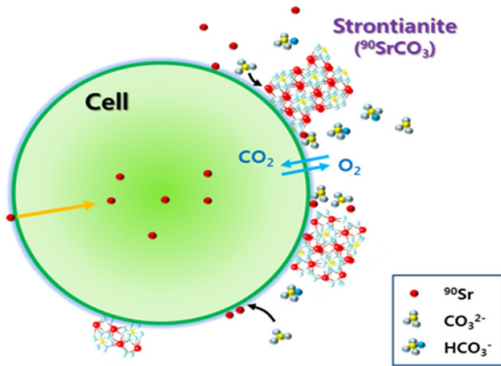


Fig. 1. A schematic diagram of the Sr-90 decontamination mechanism by *Chlorella vulgaris*.

알려져 있어 Cs-137, Sr-90 누출 시 환경 및 인체로 유입되지 않도록 사전에 제거하는 것이 매우 중요하다. 미세조류의 의한 Cs-137 및 Sr-90 제염 메커니즘은 2019년 Lee 등의 연구를 통해 보고되어 있으며, 연구결과에 의하면 Cs-137의 경우, *Hematococcus pluvialis* 세포에 존재하는 포타슘이온(K⁺)과 오염물질 중 Cs-137의 상호작용에 의하여 미세조류에 Cs-137이 흡착하는 것으로 설명하고 있다. 또한 미세조류에 의한 Sr-90 제염 메커니즘 모식도는 Fig. 1에 나타내었으며, *Chlorella Vulgaris*에 의해

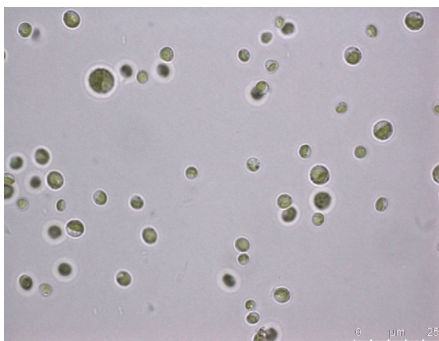
침전성이 높은 Bio-Mineral인 Strontianite(SrCO₃)을 생성함으로써 제염이 가능하다고 알려져 있다. 즉, 방사성 폐액 중 함유되어 있는 Sr-90 성분과 *Chlorella Vulgaris*가 가지고 있는 CO₃이 화학반응에 의하여 Strontianite(SrCO₃) 형태로 침전하여 제거가 가능하다¹⁾. 본 연구에서는 미세조류의 Cs-137, Sr-90의 제염 성능을 확인하고자 실험을 수행하였으며, 미세조류의 핵종별 제염 능력을 평가하였다.

2. 실험재료 및 방법

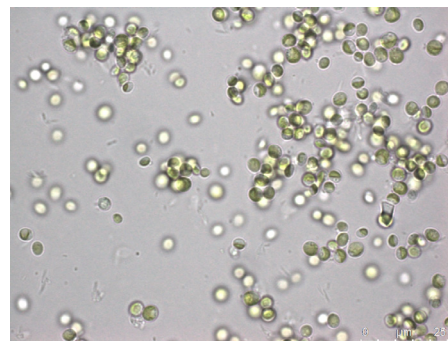
2.1. 실험재료

미세조류 2종(*Hematococcus pluvialis*, *Chlorella Vulgaris*)의 균주는 한국해양미세조류은행(KMMCC)에서 제공받았으며, 균주를 2 주간 상온(25 °C)에서 배양하여 실험에 사용하였다. 배양액은 증류수를 사용하였으며, 미세조류의 배양을 촉진하기 위한 배지는 Ca, Mg, K, Citric acid, Ferric citrate 등을 혼합하여 미세조류가 배양되고 있는 배양액에 1 회/일 투입하였다. 한편, 배양기 하부에 기체주입기를 설치하여 O₂ 및 CO₂ 혼합가스를 계속적으로 주입하였다. 2 주간 배양 후, 미세조류의 세포 상태를 관찰하였으며, 광학현미경 사진을 Fig. 2에 나타내었다.

표준 방사성 용액(Cs-137, Sr-90)은 Eckert&Ziegler사



(a) Before incubation



(b) After incubation (2 weeks)

Fig. 2. Optical micrograph of *Chlorella vulgaris* (×1,000).

Table 2. The Radioactive Source Information Used In The Experiment

Nuclide	Concentration	Chemical Form	Purity	Impurities
Cs-137	200.0 Bq/mL	CsCl in 0.1M HCl	> 99 %	0.0215 % Cs-134
Sr-90	200.0 Bq/mL	SrCl ₂ in 0.1M HCl	> 99 %	N.D.
Co-60	200.0 Bq/mL	CoCl ₂ in 0.1M HCl	> 99 %	N.D.

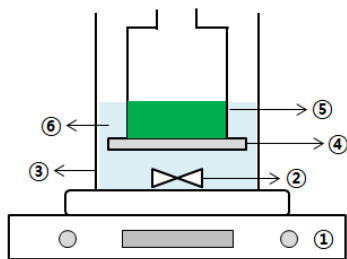
의 표준 선원을 사용하였다. 실험에 사용한 방사성 동위원소의 정보는 Table 2에 나타내었으며, 각 핵종의 농도는 200 Bq/mL이고, 순도는 99 % 이상의 동위원소를 특정 농도로 희석하여 사용하였다.

2.2. 실험방법

실험에 사용한 방사성 용액은 Cs-137, Sr-90 표준액체선원을 Table 3과 같은 농도로 3차 증류수로 희석하여 제조하였다. 실험 개요도는 Fig. 3에 나타내었고, 교반은 Magnetic stirrer 방식을 이용하였다. 미세조류는 반투과막이 부착된 용기에 투입하여, 미세조류와 모의 방사성 오염수가 분리된 상태에서 반투과막을 통하여 반응이 이루어지게 하였고, 상온에서 48시간 동안 반응시키면서 특정 시간마다 시료를 채취하였다. 채취한 시료의 방사능 농도를 분석하기 위한 방법은 γ 핵종(Cs-137)의 경우, 감마선 핵종분석기를 사용하였으며, β 핵종(Sr-90)의 경우, LSC(Liquid Scintillation Counting)를 사용하여 Sr-90 농도를 분석하였다. 각 핵종의 농도를 분석한 뒤, 제염효율을 식 (1)과 같이 계산하여 결과를 제시하였다. 한편, 미세조류는 2주간 배양하여 제염 실험에 사용하였으며, 2주간 배양하여 세포수를 세포 계수기(Multisizer 4e Coulter Counter)를 이용하여 계산하였으며, Table 4에 미세조류의 배양결과를 나타내었다.

Table 3. Composition of synthetic radioactive solution

Component	Concentration
Cs-137	1.5 Bq/mL
Sr-90	1.0 Bq/mL



- ① Magnetic Stirrer ② Magnetic Bar
- ③ Beaker ④ Membrane
- ⑤ Microalgae
- ⑥ Synthetic Radioactive Solution

Fig. 3. Experimental Apparatus.

$$DecontaminationRate(\%) = \frac{C_1}{C_0} \times 100 \quad (1)$$

(C_0 :Initial Concentration, C_1 :Concentration after Decontamination)

3. 실험 결과

미세조류의 제염 성능평가를 위하여 Cs-137, Sr-90 방사성 오염수를 제조하여 제염 실험을 수행하였다. 실험에 사용한 Cs-137 용액의 초기 방사능 농도는 1.5 Bq/mL였고, Sr-90 용액의 초기 방사능 농도는 1.0 Bq/mL였다. Cs-137의 제염 실험은 1.5 Bq/mL Cs-137 용액 500 mL에 *Hematococcus pluvialis*를 투입하여 수행하였으며, 결과는 Fig. 4에 나타내었다. 실험 결과 25 °C에서 제염 반응이 시작된 후, 6시간까지는 약 37.4 %의 제염율을 확인할 수 있었으며, 12 시간 후에는 약 61.2 %, 최종적으로 48 시간 후에는 약 88.0 %의 제염율을 확인할 수 있었다. 한편, 동일한 조건하에 온도만 50 °C로 조절하여 실험을 수행하였는데, 제염반응 6 시간까지는 25 °C에서의 제염

Table 4. Species of microalgae by nuclides type used in decontamination experiments

Nuclides	Speices of Microalgae	Concentration (Cells/mL)
Cs-137	<i>Haematococcus pluvialis</i>	4.14×10^5
Sr-90	<i>Chlorella vulgaris</i>	2.67×10^6

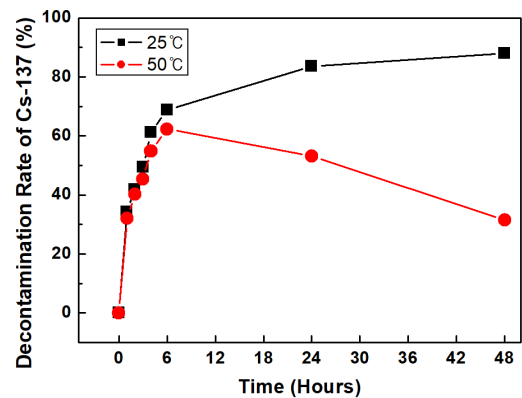


Fig. 4. The Result of Cs-137 Decontamination by *H. pluvialis* for 48 hour (Initial concentration of Cs-137:1.5 Bq/mL, Temp.:25, 50 °C).

율과 유사한 경향을 보이다 6 시간 이후부터 오히려 제염율이 감소하는 현상을 확인할 수 있었다. 제염율이 감소하는 원인은 *Hematococcus pluvialis*의 최적 성장 및 생존 온도는 15~26 °C¹²⁾, 미세조류가 생존할 수 있는 온도 범위를 초과하여 미세조류가 사멸하는 현상이 발생하여 미세조류에 흡착된 Cs-137이 용액중으로 재탈착되는 현상이 발생했다고 판단된다. 따라서 미세조류를 이용하여 Cs-137을 제염할 때 온도는 25°C 정도를 유지하는 것이 적절함을 확인하였다.

Sr-90 제염 실험은 저준위 상태의 Sr-90을 극저준위 상태로 낮추어 원자력 이용시설 내에서 처분 가능한 자체처분기준에 만족시키기 위하여 실험을 수행하였으며, 실험 개요도는 Fig. 5에 나타내었다. 우선적으로 1.0 Bq/mL Sr-90 용액에 *Chlorella vulgaris*를 투입하여 48 시간 동안 제염을 수행하였으며, 이후 1차 제염된 용액에서 Sr-90

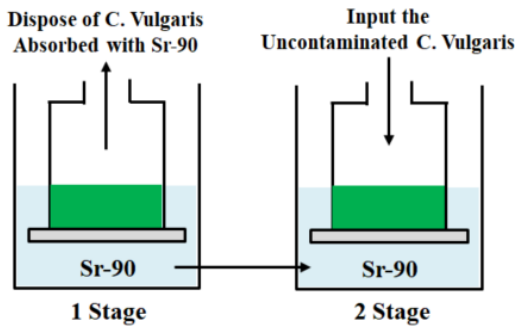
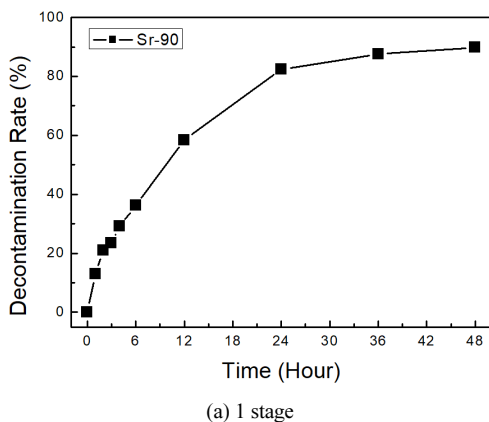


Fig. 5. Experimental Apparatus of Sr-90's 2 stages decontamination experiments.



이 흡착된 미세조류를 제거하고, 신규 미세조류를 투입하여 2차 제염실험을 동일한 방법으로 48 시간 동안 수행하였다.

실험 결과는 Fig. 6에 나타내었으며, 총 96 시간 동안 Sr-90이 1.0 Bq/mL 함유되어있던 용액을 2차 제염 방법에 의하여 0.014 Bq/mL까지 제염이 가능함을 알 수 있었고, 이때 제염율은 약 98.6 %였다.

4. 결 론

방사성 폐액속의 방사성 핵종인 세슘-137(Cs-137)과 스트론튬-90(Sr-90)의 친환경적인 제염을 위해 Cs-137, Sr-90 2개의 핵종에 대하여 미세조류를 이용한 제염실험을 수행한 결과, *Hematococcus pluvialis*에 의해 1.5 Bq/mL Cs-137을 25 °C에서 48 시간 동안 제염을 하였을 때, 최대 제염율을 확인하였으며, 약 88.0 %였다. 동일 조건하에 온도를 50 °C로 증가시킬 경우, 반응 6 시간까지는 25 °C에서 제염하였을 때와 유사한 경향성을 보이다, 6 시간 이후, 제염율이 오히려 감소하는 현상을 확인하였다. 이는 미세조류의 생존가능온도(15~26 °C)범위를 초과하여 미세조류가 사멸하면서 흡착된 Cs-137이 용액 중으로 재탈착되는 현상이 일어났다고 판단된다. 한편, Sr-90의 제염 실험을 2 단계 걸쳐 수행하였는데, *Chlorella Vulgaris*에 의해 48 시간 동안 1차 제염 결과, 제염율은 약 89.7 %, 이때의 농도는 0.104 Bq/mL였으며, 해당 용액에 Sr-90이 흡착된 미세조류를 제거한 후, 신규 미세조류를 투입하여 2차 제염 실험을 수행한 결과, 최종 Sr-90의 제염율은 약

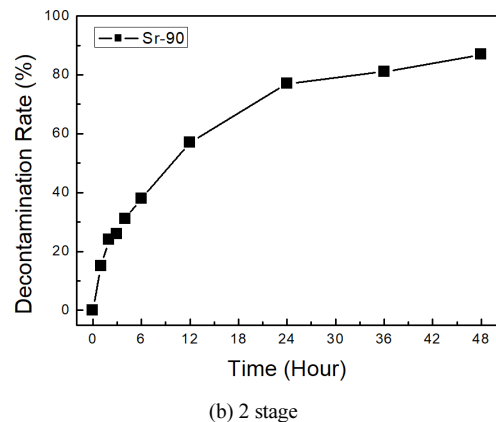


Fig. 6. The Result of Sr-90 Decontamination by *C. Vulgaris* for 96 hour (Initial concentration of Sr-90:1.0 Bq/mL, Temp.:25 °C).

98.6 %였으며, 이 때 Sr-90의 농도는 0.014 Bq/mL였다. 따라서 저준위 상태의 Sr-90을 극저준위 상태로 성공적으로 낮출 수 있었으며, 해당 Sr-90의 농도(0.014 Bq/mL)는 원자력 이용시설 내에서 처분 가능한 자체처분기준에 만족하였다.

감사의 글

본 연구는 한국에너지기술평가원 원전 안전운영을 위한 핵심소재, 부품, 장비 국산화 기술개발사업 ‘사용후핵연료 연소도 측정 설비 기술개발(과제번호:2022B1010 0060)’에 의해 수행되었습니다. 이에 감사드립니다.

References

1. Yan Xu, Junkie Kang, Jiahai Yuan, 2018 : The prospective of Nuclear Power in China, Sustainability, pp.10.
2. Firoz Alam, Rashid Sarkar, Harun Chowdhury, 2019 : Nuclear power plants in emerging economies and human resource development : A review, Energy Procedia, pp.3-10.
3. KAERI, 2005 : A Study on the Nuclear Policy & Economic Analysis of Nuclear Energy, Korea Atomic Energy Research Institute.
4. KHNP Co. Ltd., Public Data Portal, <http://www.data.go.kr/data/15060363/fileData.do>, July 18, 2022.
5. Gye Nam Kim, Seung Soo Kim, Uk Rang Park, et al., 2015 : Decontamination of Soil Contaminated with Cesium Using Electrokinetic-electrodialytic Method, Electrochimica Acta, pp.233-237.
6. Godbee, H. W., 1973 : Use of evaporation for the treatment of liquids in the nuclear industry, Oak Ridge National Lab., Tenn, USA.
7. Ahmet E. Osmanlioglu, 2018 : Decontamination of radioactive wastewater by two-staged chemical precipitation, Nuclear Engineering and Technology, pp.886-889.
8. Marina Palamarchuk, Andrey Egorin, Eduard Tokar, et al., 2017 : Decontamination of spent ion-exchangers contaminated with cesium radionuclides using resorcinol-formaldehyde resins, Journal of Hazardous Materials, pp.326-334.
9. Emory D. Collins, D.E. Benker, W.D. Bond, et al., 2003 : Development of the UREX+ co-decontamination solvent extraction process, Nuclear Chemistry Solvent Extraction.
10. F. D. Menozzi, A. Michel, H. Pora, et al., 1990 : Absorption method for rapid decontamination of solutions of ethidium bromide and propidium iodide, Chromatographia, pp.167-169.
11. Keun Young Lee, Sang Hyo Lee, Ju Eun Lee, et al., 2019 : Biosorption of Radioactive cesium from contaminated water by microalgae Haematococcus pluvialis and Chlorella vulgaris, Journal of Environmental Management, 233(1), pp.83-88.
12. Bo Ram Kim, 2012 : Optimization of microalgae (tetraselmis chui, Dunaliella tertiolecta, Nannochloropsis oculata) culture conditions for biodiesel production, Chosun University.



김 태 영

- 대전대학교 신소재공학과 석사
- ㈜엠피코 기술연구소 연구원
- 현재 ㈜오리온이엔씨 기술연구소 과장

박 해 민

- 명지대학교 물리학 박사
- Brookhaven National Laboratory 파견연구원
- 현재 ㈜오리온이엔씨 기술연구소 연구소장

송 양 수

- 조선대학교 원자력공학 석사
- 한국수력원자력(주) 원자력발전기술원 연구원
- ㈜코네스코퍼레이션 이사
- 현재 ㈜오리온이엔씨 기술연구소 상무이사

이 윤 장

- 서울대학교 원자핵공학 박사
- FZK 독일 원자력연구원 연구원
- 한국원자력연구원 열수력안전연구부 선임연구원
- 현재 ㈜오리온이엔씨 대표이사