Journal of Radiation Industry 9(4) : 217~221(2015)

한빛원전 폐수지 제염공정 개발연구

성 기 홍[1,*]

[1]조선대학교

Research and Development for Decontamination System of Spent Resin in Hanbit Nuclear Power Plant

Gi Hong Sung[1,*]

[1]*Department of Nuclear Engineering, Chosun University, Gwangju 61452, Korea*

Abstract - When reactor coolant leaks occur due to cracks of a steam generator's tube, radioactive materials contained in the primary cooling water in nuclear power plant are forced out toward the secondary systems. At this time the secondary water purification resin in the ion exchange resin tower of the steam generator blowdown system is contaminated by the radioactivity of the leaked radioactive materials, so we pack this in special containers and store temporarily because we could not dispose it by ourselves. If steam generator tube leakage occurs, it produces contaminated spent resins annually about 5,000~7,000 liters. This may increase the amount of nuclear waste productions, a disposal working cost and a unit price of generating electricity in the plant. For this reasons, it is required to develop a decontamination process technique for reducing the radioactive level of these resins enough to handle by the self-disposal method. In this research, First, Investigated the structure and properties of the ion exchange resin used in a steam generator blowdown system. Second, Checked for a occurrence status of contaminated spent resin and a disposal technology. Third, identified the chemical characteristics of the waste radionuclides of the spent resin, and examined ionic bonding and separation mechanism of radioactive nuclear species and a spent resin. Finally, we carried out the decontamination experiment using chemicals, ultrasound, microbubbles, supercritical carbon dioxide to process these spent resin. In the case of the spent resin decontamination method using chemicals, the higher the concentration of the drug decontamination efficiency was higher. In the ultrasound method, foreign matter of the spent resin was removed and was found that the level of radioactivity is below of the MDA. In the microbubbles method, we found that the concentration of the radioactivity decreased after the experiment, so it can be used to the decontamination process of the spent resin. In supercritical carbon dioxide method, we found that it also had a high decontamination efficiency. According to the results of these experiments, almost all decontamination method had a high efficiency, but considering the amounts of the secondary waste productions and work environment of the nuclear power plant, we judged the ultrasound and supercritical carbon dioxide method are suitable for application to the plant and we established the plant applicable decontamination process system on the basis of these two methods.

Key words : Sent resin decontamination, Ultrasound method, Supercritical carbon dioxide, Decontamination efficiency

* Corresponding author: Gi Hong Sung, Tel. +82-10-3644-1450, Fax. +82-62-232-9218, E-mail. ds4akf@hanmail.net

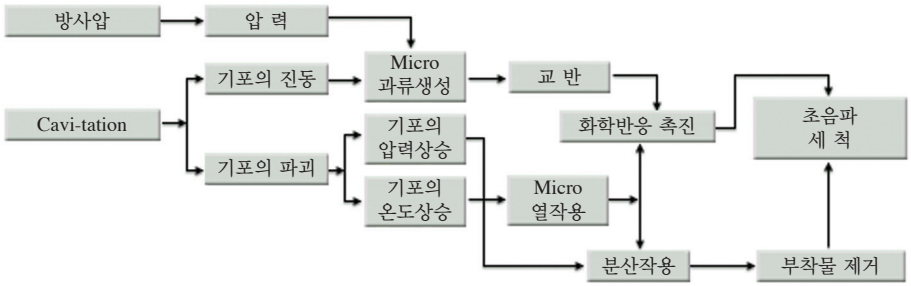


Fig. 1. Principles of ultrasonic cleaning.

서 론

원자력발전소 증기발생기 취출수 계통 탈염탑은 증기발생기(Steam generator: SG) 세관누설 시 방사성물질을 제거하여 2차계통의 오염 확산을 방지하기 위한 수질정화 탑으로 연평균 약 10,000 *l* 정도의 폐수지가 발생되고 있다(강덕원 등 2014). SG 세관의 미세결함 발생으로 교체된 폐수지에서 소량의 방사성 핵종이 검출되어 이들 폐기물의 처리 · 처분 방향이 결정되지 않은 상태에서 발전소 내에 보관 중이다.

증기발생기 취출수 탈염 탑으로부터 발생한 폐수지의 핵종분석결과, 일부 수지에서는 저 방사성 농도의 ^{60}Co 핵종이 검출되었고 분석 값은 5.7×10^{-5} μCi g^{-1}로 규제기관의 자체처분 규제 및 절차서 기준 값인 2.7×10^{-6} μCi g^{-1}을 약간 초과하고 있는 것으로 확인되었다(한국원자력안전기술원(KINS) 규제지침 2011; 한국원자력안전위원회. 고시 2013-33호. 2013). 폐수지 해결(자체처분)을 위해 초음파 및 초임계 원리를 이용하여 제염평가를 하고자 하며 이러한 자체처분 기술을 확립하고 사전 응용 연구결과를 토대로 전 발전소에 있는 폐수지 제염 자동화시스템을 구축함으로써 폐기물 정책에 탄력적으로 대응하고자 하며, 전 원전의 공통 현안 사항을 해결함으로써 방사성폐기물의 제염 및 감용에 따른 소내 저장 공간의 이용률 제고와 장기보관에 따른 부담감 해소 및 방사성폐기물 처분비용을 절감하는 데 기여하고자 한다.

재료 및 방법

1. 초음파를 이용한 폐수지 제염실험

한빛 제1발전소에서 발생한 폐수지를 물과 혼합하여 스크린 메시와 종이필터를 이용해 폐수지와 이물질로 1차 여과 · 분리한 후 방사능 농도를 평가하였으며, 여과에 의해 1차 분리된 폐수지에 물을 첨가한 후 Fig. 1과 같이 제작한 Horn형 초음파 장치(21 kHz, 1.8 KW)를 이용하여 1시간 동안 초음파를 인가시켜 이물질을 탈착시킨 후 스크린 메시와 종이필터를 이용해 2차 여과 · 분리하여 분석하였다.

Fig. 2. Spent resin decontamination device using ultrasound.

2. 초임계 이산화탄소를 이용한 추출 · 분리

폐수지 중 ^{60}Co을 추출 · 분리하기 위해 Co를 추출하는데 널리 사용되고 있는 Cyanex-272를 추출제로 선정하였고(Basudev *et al*. 2011), 초임계 이산화탄소가 용해된 수용액의 pH를 중 · 염기성으로 변화시켜 Co 추출효율을 향상시키기 위한 보조추출제로 디에틸아민(DEA, Diethylamine)을 사용하였다(Moonsung Koh *et al*. 2005). 초임계 이산화탄소 조건(60°C, 200 bar) 하에서 Cyanex-272와 디에틸아민을 이용하여 폐수지와 황산수용액에 용해되어 있는 Co 추출 · 분리실험을 수행한 후 유도결합프라즈마로 분석하였다.

결 과

1. 초음파를 이용한 폐수지 제염실험

1차 여과 · 분리된 폐수지 중 ^{60}Co 농도는 0.187 Bq g^{-1}이며, 이물질 중 ^{60}Co 농도는 6.18 Bq g^{-1}으로 ^{60}Co은 대부분 이물질에 존재함을 알 수 있었다. 2차 초음파처리 된 폐수지 중 ^{60}Co 농도는 MDA 미만으로 초음파처리를 통해 폐수지에 흡착된 이물질이 추가로 탈착되는 것을 확인할 수 있었다.

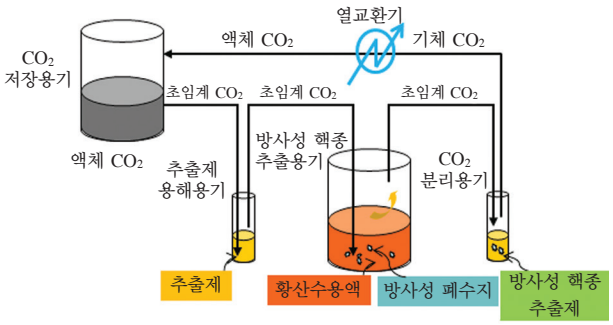


Fig. 3. Radionuclides extraction mechanism using supercritical carbon dioxide.

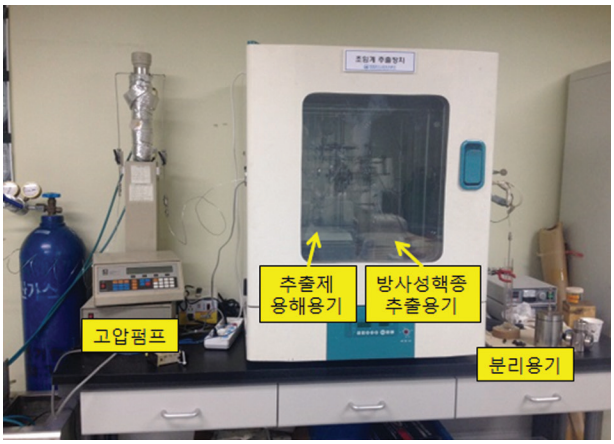


Fig. 4. Supercritical carbon dioxide extraction equipment.

Table 1. Results of spent resin decontamination device using ultrasound

Radioactive spent resin	
Weight (g)	30.15
^{60}Co density (Bq g^{-1})	0.767
Total density (Bq)	23.13

Primary filtration (Screen Mesh, Paper fiters)

Filtration spent resin	
Weight (g)	26.7
^{60}Co density (Bq g^{-1})	0.187
Total density (Bq)	4.99
Decontamination efficiency (%)	75.6

Filtration foreign matter	
Weight (g)	2.6
^{60}Co density (Bq g^{-1})	6.18
Total density (Bq)	16.07

(a) Radioactivity after filtration

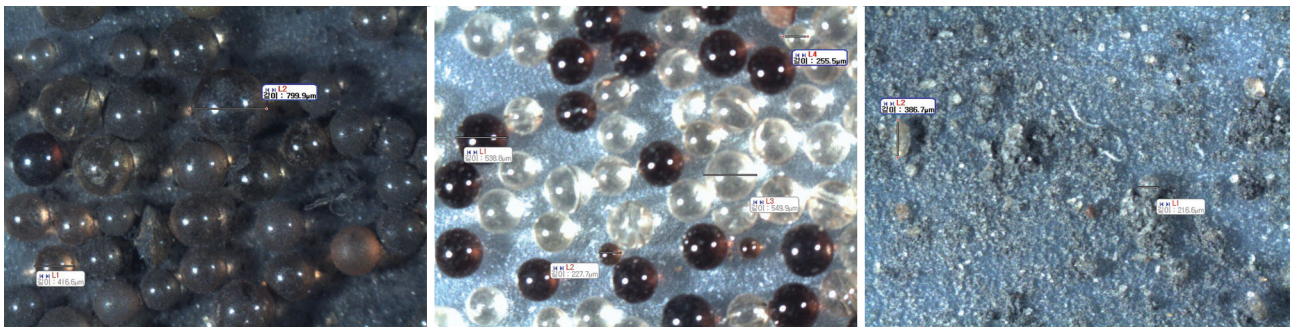
Filtration spent resin	
Weight (g)	26.7
^{60}Co density (Bq g^{-1})	0.187
Total density (Bq)	4.99

Ultrasound method (Secondary)

Ultrasound method	
Weight (g)	23.6
^{60}Co density (Bq g^{-1})	under MDA
Total density (Bq)	–
Decontamination efficiency (%)	100

Foreign matter	
Weight (g)	1.9
^{60}Co density (Bq g^{-1})	2.16
Total density (Bq)	4.10

(b) Radioactivity after ultrasound method



(a) Before (b) After (c) Foreign matter

Fig. 5. Electron microscopy before and after ultrasound method.

Table 2. Radionuclide analysis before and after filtration

Method	Item	Before	After		Decontamination efficiency (%)
		Spent resin	Spent resin	Foreign matter	
Sifting	^{60}Co (Bq g^{-1})	1.55	0.54	12.70	65.1
	^{14}C (Bq g^{-1})	4.28	0.96	3.91	77.5
Magnet	^{60}Co (Bq g^{-1})	1.55	0.29	10.00	81.2
	^{14}C (Bq g^{-1})	4.28	1.81	3.77	57.7
Ultrasound	^{60}Co (Bq g^{-1})	0.77	MDA	6.4	100
	^{14}C (Bq g^{-1})	1.32	0.17	12.78	87.1

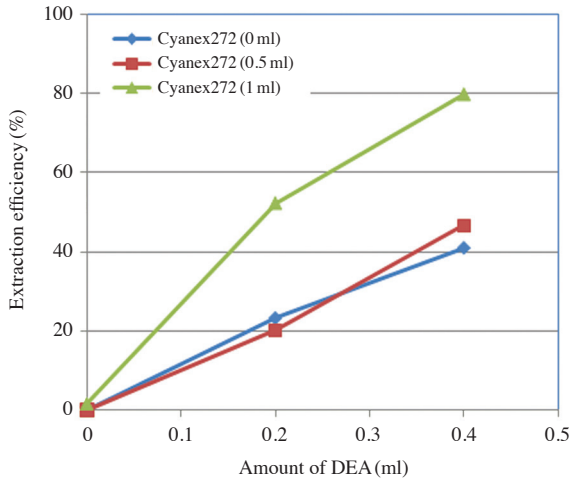


Fig. 6. Co extraction efficiency under supercritical carbon dioxide.

2차 여과 · 분리하여 분석한 폐수지와 이물질 중의 방사능 농도를 Table 1에 정리하였다.

2. 초음파를 이용한 폐수지 제염 성능평가

폐수지로부터 이물질 분리성능은 채와 자석을 이용한 분리보다는 초음파를 이용한 분리가 더욱 효과적일 뿐만 아니라, ^{60}Co과 ^{14}C 농도도 각각의 규제해제 기준농도인 0.1 Bq g^{-1}과 1 Bq g^{-1} 이하로 나타나 폐수지 제염공정에 활용할 수 있을 것으로 확인되었다.

Table 3. Results of ^{60}Co extraction using supercritical carbon dioxide

Test	^{60}Co (Bq g^{-1})			Decontamination efficiency (%)
	Before	After		
	Spent resin	Spent resin	Sulfuric acid solution	
1	0,86	MDA	MDA	100
2	0,59	MDA	MDA	100
3	0.77	MDA	MDA	100

초음파를 이용한 폐수지와 이물질 분리 후 분석한 ^{60}Co, ^{14}C 농도를 채와 자석으로 분리한 후 분석한 ^{60}Co, ^{14}C 농도와 함께 Table 2에 정리하였다.

또한, 초음파처리 후 폐수지 중 ^{60}Co 농도가 낮아진 이유가 폐수지에 흡착되었던 이물질의 탈착에 의한 것인지를 확인하기 위하여 초음파처리 전 · 후 폐수지와 이물질을 75배율의 전자현미경으로 관찰하여 Fig. 5에 나타내었다. 초음파처리를 한 폐수지에 이물질이 거의 남아있지 않은 것으로 보아 이물질의 탈착에 의해 폐수지 중 ^{60}Co 농도가 낮아진 것으로 확인되었다.

3. 초임계 이산화탄소를 이용한 방사성핵종 추출 ·분리

초임계 이산화탄소 조건(60°C, 200bar) 하에서 Cyanex-272와 디에틸아민을 이용하여 폐수지와 황산수용액에 용해되어 있는 Co 추출 · 분리실험을 수행한 후 유도결합프라즈마로 분석한 결과를 Fig. 6의 그래프로 나타내었으며, 디에틸아민의 양이 증가할수록 Co 추출효율이 80%까지 향상되는 것을 확인하였다.

방사성폐수지와 0.2% 황산수용액을 초임계 추출용기에 넣고 초임계 이산화탄소 조건(60°C, 200bar) 하에서

Cyanex-272와 에틸아민을 이용하여 ^{60}Co을 추출 · 분리한 결과를 Table 3에 정리하였다. 폐수지뿐만 아니라 황산수용액 중의 ^{60}Co 농도가 MDA 이하로 확인되어 폐수지 제염공정에 적용이 가능한 것으로 확인되었다.

고 찰

폐수지는 발전소의 폐기물 건물 내 여유 공간의 부족 및 악취발생과 화재위험성으로 폐기물 건물 운전 및 정비 수행에도 지장을 초래하므로 시급한 처리가 필요하다. 이러한 폐수지를 해결(자체처분)하기 위해 접근된 방법으로 화학약품, 초음파, 마이크로버블, 초임계 원리를 사용해 보았으며 각각의 제염결과를 보아 실제 현장에 적용하기 좋은 방법으로 초음파와 초임계 원리를 사용하는 것이 효율적인 방법으로 보인다. 초음파 제염장치는 제염효율이 90~99% 정도로 나타났고 초임계 이산화탄소 제염장치는 Co 핵종에 대해 최대 70% 제거효율을 나타냈다.

결 론

원자력발전소 SG 취출수 정화계통 및 CPP (Condensate Polishing Plant) 수지의 오염정도는 샘플마다 조금씩 차이가 있지만 대부분 자체처분 기준치를 웃도는 값을 나타내었고 이러한 폐수지는 발전소의 폐기물 건물 내 여유 공간의 부족 및 악취발생과 화재위험성으로 폐기물 건물 운전 및 정비 수행에도 지장을 초래하므로 시급한 처리가 필요하다. 이러한 폐수지를 해결(자체처분)하기 위해 접근된 방법으로 화학약품, 초음파, 마이크로버블, 초임계 원리를 사용해 보았으며 각각의 제염결과를 보아 실제 현장에 적용하기 좋은 방법으로 초음파와 초임계 원리를 사용하는 것이 효율적인 방법으로 보인다. 초음파 제염장치는 제염효율이 90~99% 정도로 나타났고 초임계 이산화탄소 제염장치는 Co 핵종에 대해 최대 70% 제거효율을 나타냈다.

향후 본 제염기술을 잘 활용한다면, 원전에서 발생되는 극미량의 오염 폐수지에 완벽한 제염을 수행하게 되어 방사성폐기물 발생량 저감화와 처분비용 저감화에 크게 기여할 수 있을 것으로 기대된다.

참 고 문 헌

강덕원, 조영수, 김승일, 김현기, 이세반, 허준, 안희진, 성기홍, 2014. 초임계 CO_2를 이용한 폐수지의 제염기술. 대한방사선방어학회 추계학술발표회 논문요약집. pp. 264-265.

한국원자력안전기술원(KINS). 2011. “경수로형 원자력발전소 규제기준 및 규제지침(KINS/RS-N1200)”.

한국원자력안전위원회 고시 2013-33호, “방사성폐기물의 자체처분에 관한 규정”.

Koh MS, Park KG, Yang DH, Kim HW and Kim HD. 2001. The Synergistic Effect of Organophosphorus and Dithiocarbamate Ligands on Metal Extraction in Supercritical CO_2. *Bull. Korean. Chem. Soc.* **26**:423-427.

Swain B and Otu EO. 2011. Competitive extraction of lanthanides by solvent extraction using Cyanex 272: Analysis, classification and mechanism. *Sep. Purif. Technol.* **83**:82-90.

Received: 14 December 2015
Revised: 16 December 2015
Revision accepted: 17 December 2015