

'97 춘계학술발표회 논문집

한국원자력학회

원전 방사성 세탁폐액 특성 및 처리에 관한 연구

김종빈, 박종길, 안희진

전력연구원

대전광역시 유성구 문지동 103-16

요 약

원전에서 발생하는 방사성 세탁폐액을 환경방사능 Zero Release 개념하에 완전히 처리하는 공정으로서 역삼투막을 이용한 방법이 연구되고 있는데 이에 앞서 역삼투막 공정의 주요 장애요소인 계면활성제 및 현탁물에 의한 막도 제거를 위한 전처리 공정으로 활성탄과 한외여과막 결합장치를 제작하여 운전하였으며 실험 결과 90% 이상의 높은 세제 제거율과 60% 이상의 막도 제거율을 얻을 수 있었다.

1. 서 론

원전에서 발생하는 방사성 세탁폐액은 방사능에 오염된 기기의 세염, 방사선 작업시 오염된 옷의 세탁 그리고 방사선 작업자의 샤워 등에 의하여 다량으로 발생된다. 방사성 세탁폐액은 계면활성제(약 100 ppm), 방사성 물질, 그리고 현탁 및 용존 고형물(2,000 ppm이하) 등으로 구성된다. 이러한 세탁폐액은 방사능 농도를 환경방출 허용치 보다 낮게 희석하여 방류토록 하고 있으나 현재, 환경방사능 Zero Release 개념을 도입하여 완전히 처리하는 공정을 다각적으로 검토하고 있으며 이의 개발을 위해 여러 가지 공정이 연구되고 있다. 이러한 공정 개발 연구 중 최근 원자력 관련시설로부터 발생되는 저준위 방사성 액체폐기물의 처리 방법으로 막분리 공정이 안전하고 경제적인 처리기술로서 그 활용도가 급격히 증가하고 있다.[1] 막분리 공정은 장치가 단순하고 조작성이 용이하며 특정물질의 분리가 가능하고, 상변화를 동반하지 않고 물질이 분리되기 때문에 열에 의한 용질의 변화, 스케일화 및 재질의 부식을 막을 수 있는 특성이 있다. 여러 가지 막분리 공정 중 방사성 폐액처리 분야에서 응용되고 있는 공정은 역삼투막(Reverse Osmosis Membrane)공정이 주를 이루고 있으며 분리의 일차적인 추진력은 막사이의 압력차이지만 역삼투막 자체가 비다공성막(Pore size 5~20Å)으로서 물질 분리가 물질의 크기보다는 막표면과 대상

물질 사이의 물리화학적 상호작용에 의해서 이루어지므로 폐액내에 있는 대부분의 방사성 핵종 및 비방사성 염을 효율적으로 제거할 수 있다. 그러나 계면활성제 등의 화학종들에 의한 막표면 축적과 같은 오염으로 인한 성능 감소로 처리수에 대한 회수율이 급감하고 이에따라 염 배제율에도 큰 영향을 미치게 된다.[2] 이러한 단점을 보완하기 위해서 외국의 연구기관에서는 막분리 기술의 사용목적에 따라 막재질 및 막의 모듈 형태 등으로 구분되어 많은 연구가 이루어지고 있다.[3] 특히 막공정의 조업과 더불어 필연적으로 발생하는 막의 Fouling을 제거하기 위해서 물리 화학적 방법에 의한 전처리, 막모듈의 개선 등으로 새로운 Fouling 제거 기술이 제시되고 있다.

따라서 본 고에서는 분리막을 이용한 방사성 세탁폐액의 효율적인 공정 개발을 위하여 원전 방사성 세탁폐액의 특성을 분석하고 활성탄 및 한외여과막에 의한 계면활성제의 흡착 제거 실험을 실시하여 역삼투막 공정의 전처리로서의 최적 공정을 제시코자 하였다.

2. 방사성 세탁폐액 특성 분석

방사성 세탁폐액에 대한 분석사항들을 표 1에 나타내었다. 방사성 핵종을 제외한 금속 및 비금속 이온 중 분리막 오염에 영향을 주는 경도성분(Calsium, Magnesium)은 음용수 수질의 기준치 이하이고 막을 화학적으로 부식시키는 요소 중의 하나인 염소 잔류량 또한 극미량으로 분석되었다. 그러나 방사성 세탁폐액을 분리막으로 처리함에 있어 막오염의 결정적 요인으로 작용하게 될 계면활성제 성분의 경우는 음이온 계면활성제(LAS)는 검출되지 않아 환경 규제치(5 ppm이하)를 벗어나지 않았으나 비이온 계면활성제가 100 ppm 정도 검출되어 조업상 분리막에 대한 심각한 오염을 일으킬 수 있으므로 전처리 과정을 통하여 완전 제거 또는 95% 이상을 제거해 주어야 한다. 또한 극미량 함유된 방사성 핵종이 계면활성제 등과 Colloid 성분으로 존재할 경우 전처리 과정 중 활성탄에의한 물리·화학적 흡착으로 일부분을 제거할 수 있다. 그러나 탁도에 의한 역삼투막의 오염은 활성탄으로 제거가 곤란하므로 한외여과막으로 처리하고자 하였다.

3. 활성탄 및 한외여과막에 의한 전처리 실험

3.1. 실험장치

전처리 실험장치는 그림 1과 같이 자체제작하여 사용하였으며 이때 사용한 활성탄 filter 및 한외여과막에 대한 사양을 표 2에 나타내었다. 활성탄 Filter는 저분자인 계면활성제를 물리·화학적으로 흡착·제거하기 위한 것으로 일정한 유속에서 세탁폐수와의 접촉면적을 최대로 하기위해 비표면적이 큰 Spiral Wound Type의 섬유상을 사용하였으며 탁도 및 현탁 부유물과 Colloid의 제거를 위해 사용한 한외여과막은 선경인더스트리로부터 구입한 모델명 SKU-103-0810의 Hollow Fiber Type Module을 사용하였다.

3.2. 모의 세탁폐액 제조

방사성 세탁폐액에 대한 전처리실험을 위해 모의세탁폐액을 다음과 같이 제조하였다. 우선 방사성 세탁폐액에서 분석된 비이온 계면활성제는 비이온계 세제원액을 정량 분석한 후 용수에 희석하여 사용하였는데 세제원액은 현재 원전에서 사용하고 있는 것으로서 주성분이 비이온 계면활성제인 Alkyl Amide 가 71.4%이며 그외에 음이온 계면활성제인 Sodium Alkyl Sulfonate가 약 8%, 그리고 그밖에 소포제, Inhibitor 등의 성분으로 구성되어 있다. 이때, 용수는 방사성 방사성 핵종을 제외한 세탁폐액의 금속·비금속 이온 함유량과 유사한 전력연구원 공급원수를 사용하였으며 원전에서 발생하는 방사성 세탁폐액 내에는 계면활성제 성분이 100 ppm 정도가 함유되어 있으므로 모의폐액의 제조시 세제원액을 정량 희석한 다음 용수와 혼합하여 비이온 계면활성제 성분이 약 200 ppm이 되도록 하였다.

3.3. 실험방법

실험은 두단계로 나누어 실시하였는데 우선 상온의 조건하에서 제조된 모의폐액 20ℓ를 Feed Pump를 이용하여 2 kg/cm²의 압력을 유지하며 2ℓ/min의 유속으로 활성탄 Filter에 공급하였고 활성탄 Filter를 통과한 처리수는 다시 원수탱크로 유입되는 Batch 방법으로 1시간을 운전하였다. 이때 시간변화에 따른 활성탄 Filter의 세제 제거를 확인하기 위해 활성탄 Filter 전·후단에 Sample Cock을 설치하여 시간별로 시료를 추출한 다음 COD 분석을 실시하였다. 다음으로 활성탄에 의해 처리된 투과수는 탁도 제거를 위해 한외여과막으로 직접 공급되어졌는데 이때의 운전 조건은 유입압력이 2 kg/cm², 투과 Flux가 25ml/min 이었고 처리수의 회수율이 99% 일때까지 순환하였으며 실험 기간 중 유속의 변화량은 거의 없었다. 탁도 분석은 한외여과막으로 처리되기 전 시료와 처리 후 투과수의 회수율에 따라 시료를 추출하여 실시하였다.

4. 결과 및 고찰

기존의 원전에서 사용하고 있는 세제를 성분별로 분석하기는 실험적으로 곤란하기 때문에 총 화학적 산소요구량에 의한 유기물 정량법인 COD를 이용하여 활성탄에 의한 세제성분의 제거를 확인하였다. 그 결과를 그림 2에 나타내었다. 활성탄에 의한 계면활성제의 제거는 10분 운전 시까지는 급격히 진행되다가 이후부터는 완만한 제거율을 보였는데 이는 제작된 공정으로서는 흡착 평형점에 이르기까지의 시간이 약 15분 내외인 것으로 섬유상 활성탄에 대해 흡착질인 계면활성제의 흡착평형 농도는 액상흡착의 경우에 적용되는 Freundlich 흡착 평형식에 적용될 수 있다. [4] 그러나 흡착질에 대한 흡착량과 평형 농도와의 상관관계는 향후 연속 공정의 실험을 실시하여야 하며 '원전 방사성 세탁폐액 특성 및 처리에 관한 연구 II'의 논문을 통하여 발표할 것이다. 그림 3과 4는 한외 여과막에 의한 탁도 및 용존 고형물(TDS)의 제거율을 나타낸 것으로서 활성탄을 거친 시료와 비교하여 탁도의 경우 약 60% 이상의 제거를 확인할 수 있었다. 그러나 TDS의 변화는 상대적으로 제거효율이 좋지 않았는데 이것은 실험에 사용된 한외여과막의 분획분자량

이 10,000으로서 모의폐액에 잔존해 있는 용존물의 분자량이 분획분자량 이하로 대부분 구성되었기 때문에 생각된다. 따라서 한외여과막을 통한 용존물의 제거에는 분획분자량을 10,000 이하의 것으로 선정해야 할 것으로 사료된다.

5. 결론 및 향후 연구계획

원전에서 발생하는 방사성 세탁폐액을 역삼투막을 이용하여 처리하기 위한 전처리로서 활성탄 Filter와 한외여과막의 결합 공정을 제작하였으며 모의 폐액을 제조하여 이 장치로서 일정한 운전 조건하에서 실험을 실시한 결과 활성탄 Filter에 의해, 역삼투막 오염의 주요 원인이 되는 세제를 90% 이상 제거할 수 있음을 확인하였고 탁도 또한 한외여과막으로 60% 이상 제거함을 알 수 있었다. 이러한 결과를 토대로 전처리 공정을 최적화 하여 향후 역삼투막을 이용한 방사성 세탁폐액 처리장치를 개발할 계획이다.

참고문헌

1. A. O. Hobbs, and P. E. Raleigh, "Review of LWR Experience with Membrane Technology", Proceedings of Waste Management '84, Univ. of Arizona, Tucson AZ, 1984.
2. M. Kikuchi, Y. Sugimoto, et al., "Development of A Laundry Waste Treatment System", Nuc. Eng. and Des., 44 413-420, 1977.
3. G. Trigilio, "Volume Reduction Techniques in Low-Level Radioactive Waste Management", NUREA/CR-2206, 1981.
4. 眞田雄三 外 3人 共著, "活性炭 基礎와 應用", 請談社 譯編, 1996

표 1. 방사성 세탁폐액 성분 특성

▶ 일반 분석 사항

분석 사항	pH	Temp. (°C)	TS (ppm)	TSS (ppm)	Cond. (μS/cm)	Vis. (mPa·S)	Turb. (NTU)	COD (ppm)	LAS (ppm)	Surf. tension (mN/m)	Non-ion Surfactant (ppm)
분석결과	6.5	25	72.5	7	70	10	13	64	ND	40.13	100

▶ 금속 및 비금속 이온 함유량

분석 사항	Ca ⁺² (ppm)	Mg ⁺² (ppm)	Fe ⁺² (ppm)	Na ⁺ (ppm)	K ⁺ (ppm)	Cl ⁻ (ppm)	F ⁻ (ppm)	SO ₄ ⁻² (ppm)	CO ₃ ⁻² (ppm)	CO ₂ (ppm)	HCO ₃ ⁻ (ppm)	NO ₃ ⁻ (ppm)	SiO ₂ (ppm)
분석결과	6	2	ND	14	1.4	25	ND	6.8	ND	ND	3	0.47	4.57

▶ 방사성 핵종 성분 분석

분석 사항	⁵⁴ Mn (μCi/cc)	⁵⁸ Co (μCi/cc)	⁶⁰ Co (μCi/cc)	¹³⁴ Cs (μCi/cc)	¹³⁷ Cs (μCi/cc)	총 방사능량 (μCi/cc)
분석 결과	1.1x10 ⁻⁸	1.48x10 ⁻⁷	3.81x10 ⁻⁷	1.9x10 ⁻⁸	6.8x10 ⁻⁸	6.3 x 10 ⁻⁷
Error율 (%)	3.0	4.9	4.2	17.7	8.7	

표 2. 전처리 실험 장치에 사용된 활성탄 및 한외여과막 사양

▶ 활성탄 Specification

Module size	3/4 inch X 8 inch
Specific surface area	1,000 m ² /cc
Filter pore size	5 μm
Module type	섬유상 Spiral wound

▶ 한외여과막 Specification

항목	단위	
초기순수투과수량	L/hr	9.6
분획분자량	-	10,000
규격	유효막면적	m ²
	모듈크기	mm∅ X mmL
	막직경	mm∅
사용조건	최고사용압력	kg/cm ²
	정상운전압력	kg/cm ²
	사용온도	°C
	pH	-
소재	모듈	-
	Casting	-

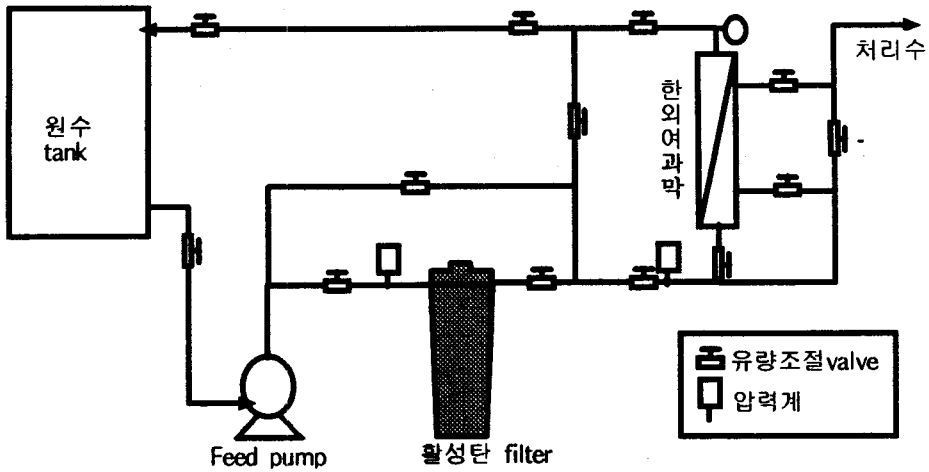


그림 1. 활성탄 및 한외여과막을 이용한 방사성 세탁폐액 전처리실험 장치

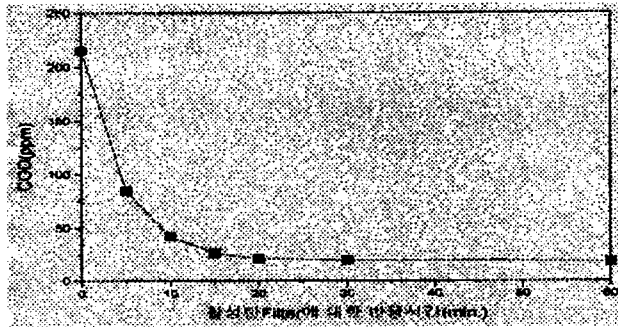


그림 2. 활성탄 Filter의 반응시간에 따른 세제제거변화

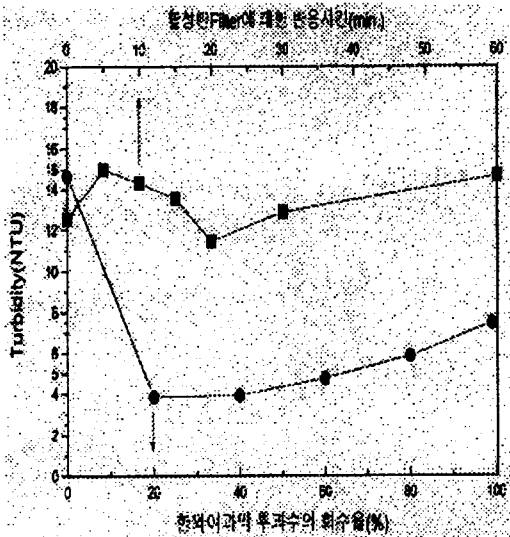


그림 3. 전처리장치실험에 따른 탁도변화

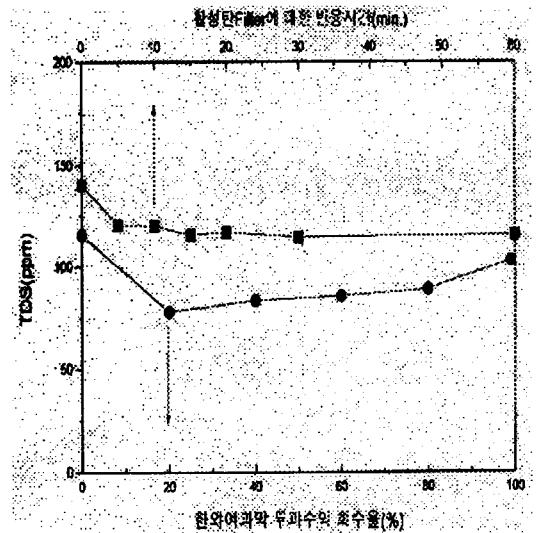


그림 4. 전처리장치실험에 따른 TDS변화