

일반강연 D-5

막 분리 공정을 이용한 방사성 폐액의 전처리

박헌휘 · 최영근* · 서창희* · 이상진**

호서대학교 · (주)이엔이* · 한국수력원자력(주)**

Membrane Processes for Pre-treatment of Radioactive Wastewater

Park Hun Hwee · Choi Young Keun* · Seo Chang Hee* · Lee Sang Jin**

Hoseo University · ENE Co., Ltd* · KHNP Co., Ltd**

1. 서론

원자력발전소에서 발생하는 방사성 액체폐기물은 크게 증발기와 선택성 이온교환설비를 이용하여 처리하고 있다. 국내 원자력발전소 고리 2호기는 방사성 폐액 처리시스템으로 운전 중이던 폐액 증발기가 파울링으로 인해 성능이 크게 저하되자 1999년에 이를 선택성 이온교환설비(Selective Ion Exchange System, SIES)로 대체하였다. 그러나 본 설비로 유입되는 방사성 폐액에 함유된 부유물질과 기름성분들에 의해 선택성 이온교환설비의 활성탄과 이온교환수지가 쉽게 오염이 되는 등 운영상의 제반 문제가 대두되어 선택성 이온교환설비의 정상적인 운전이 불가능하였을 뿐만 아니라 입자성 핵종인 Ag-110m의 제거가 불가능한 문제점이 대두되었다. 따라서, 선택성 이온교환설비로 유입되는 방사성 폐액의 수질을 개선함으로써 본 설비의 방사성 핵종에 대한 제거 성능을 향상시키고자 선택성이온교환 공정의 보완 공정으로써 막분리 공정을 적용하기 위한 연구를 수행하게 되었다. 본 연구에서는 1 NTU 이하의 목표 수질로 처리할 수 있는 정밀여과분리막과 이온성 물질을 분리할 수 있는 나노분리막을 조합한 실험실 규모 처리장치와 고리 2호기 선택성 이온교환설비를 축소 모사한 소규모 선택성 이온교환장치를 제작하여 고리 2호기에서 발생하는 방사성 폐액을 처리하였다. 또한 Wilbert[6]와 Chihani[7]의 연구에 따르면 Silver(Ag)로 오염된 수질을 나노분리막으로 처리한 결과 99 % 이상의 제거효율을 보았다고 보고한 바, 본 연구에서도 나노분리막을 이용한 Ag-110m의 처리특성을 조사하여 고리 2호기 선택성 이온교환설비의 전처리 가능성을 조사하였다.

2. 본론

2.1 실험장치 및 방법

Fig. 1은 방사성폐액 중의 부유성물질을 제거하기 위한 정밀여과장치이며, 방사성폐액이 연속적으로 유입되는 0.2m³의 드럼안에 정밀여과분리막이 잠겨있다. 정밀여과분리막은 흡입펌프에 의하여 6분의 가동과 10초의 역세정으로 처리되었으며, 역세정시 처리수를 사용하였다. 운전기간 중의 흡입압력 및 처리수량은 계측기를 통하여 확인하였으며, 처리수는 다음 공정인 나노분리막 및 이온교환장치의 유입수로 사용되며, 또한 처리효율을 판단하기 위하여 탁도, SS(Suspended Solid) 및 총방사능 분석을 실시하였다. Fig. 2는 나노분리막 장치이며, 정밀여과분리막의 처리수를 0.5 m³/hr의 유량과 8 kgf/cm²의 압력으로 처리하였다. Fig. 3

은 고리 2호기에서 사용되고 있는 활성탄, Cs 제거용 양이온 및 음이온 그리고 혼상의 이온교환수지가 각각 충전된 장치이며, 정밀여과막처리수 및 나노분리막 처리수를 원수로 하여 0.001 m³/min의 유량으로 처리를 실시하였다. Table 1에서는 각 공정에 사용된 장치의 특징 및 사양을 나타내었다.

2.2 실험공정

실험공정은 두 가지로 구분하여 실시하였으며, 첫 번째 공정은 MF-NF-SIES의 순서로 실시하였으며, 두 번째 공정은 MF-SIES-NF의 순서로 실시하였다. 공정의 모식도는 Fig. 4에 나타내었다.

3. 결과 및 토의

3.1 방사성 폐액의 특징

본 연구 대상 방사성 폐액은 FDT(Floor Drain Tank)와 WHT(Waste Holdup Tank)이며, Table 2에 분석 결과를 나타내었다. 분석결과 FDT 폐액은 WHT 폐액에 비하여 탁도 및 SS가 높게 나타났으며, 방사능은 일반적으로 알려진 바와 같이 약 2배 정도 낮게 조사되었다. 또한 Ag-110m의 방사능은 FDT 폐액보다 WHT 폐액에 더 높게 존재하고 있었다.

3.2 공정별 처리결과

3.2.1 MF-NF-SIES 공정

FDT 폐액을 MF-NF-SIES 공정으로 처리한 결과 탁도와 부유물질의 경우 MF 막 에서 98% 이상, NF 막 공정에서 95% 이상 제거되었다. 방사능 변화에서는 초기 MF 막 공정의 처리수에서 Ag-110m이 제거되는 결과를 보였다. MF 막 특성상 이온성 물질과 부유물질이 혼재되어진 상태에서 이온성 물질이 제거된다는 연구[8]에 따르면 금속 이온이 입자성 부유물질의 표면에 하전된 전하에 의하여 물리·화학적인 흡착이 발생하여 MF 막의 공극으로 부유물질과 함께 투과되지 못하여 제거된다는 것이다. 따라서 FDT 폐액에 존재하는 부유성 물질이나 MF 막 표면에 부착되어진 부유물질 등에 의한 케이크 층에 흡착되어진 결과로 판단되며, 이후 처리유량이 증가함에 따라 다시 Ag-110m이 검출되는 것은 입자성 부유물질의 흡착능력을 상실하는 시점으로 판단된다. MF 막 처리수를 NF 막으로 처리한 결과 Ag-110m은 대부분 제거되었으며, NF 막 처리수를 분당 1리터의 유량으로 SIES 공정으로 처리한 결과 방사성 핵종을 모두 제거할 수 있어, MF-NF-SIES 공정은 방사성 폐액을 처리하기 위한 공정임을 확인하였다.

3.2.2 MF-SIES-NF 공정

WHT 폐액을 MF-SIES-NF 공정에서 MF 막 처리수를 SIES로 유입한 결과 처리수 0.06 m³ 이상에서 방사성 핵종이 검출되었으며, 0.09 m³ 이상의 처리수로부터는 Ag-110m이 검출되었다. 이것은 MF 막에서 부유물질 이외의 물질이 대부분 SIES 공정으로 유입되어 SIES 공정의 이온교환수지의 성능이 빠르게 소멸되기 때문으로 판단된다. SIES 공정의 처리수 중 Ag-110m은 NF 막에서 모두 제거가 가능하였으나, Co-58 등은 제거되지 못하였다. 따라서 SIES 공정과 NF 막 공정의 조합은 적절하지 못한 것으로 사료된다. 따라서 방사성 폐액의 공정으로 MF-NF-SIES 공정이 적절한 것으로 판단된다.

3.2.3 연속운전 결과

처리공정별 실험 결과를 근거로 MF-NF-SIES 공정으로 WHT 폐액을 연속 처리하였으며, 장치의 용량별로 MF 막, NF 막 및 SIES는 각각 약 24 m³, 1.5 m³ 그리고 1.5 m³을 처리하였다. 각 장치별 처리수질은 Table 5에 나타내었다. MF 막은 초기 10 cmHg의 흡입압력으로 시작하여 24시간 후 30 cmHg까지 상승하여 약 67 %의 차압이 발생하였으나, 처리유량은 1 m³/hr에서 0.75 m³/hr 까지 약 25 %만이 감소하는 결과를 보였다. 일반적으로 MF 막 공정에서 압력과 처리유량은 반비례[9]하여 분리막의 세정 및 교체주기를 판단하는 지표로 삼고 있으나, 본 결과에서는 비례 폭이 비교적 낮게 유지되었다. 이것은 대상 폐액의 성상이 MF 막의 여과단면에 대한 오염현상을 비교적 적게 주는 것으로 판단되며, 처리수 중의 일부를 역세정으로 공급함으로써 폐색된 여과단면의 공극을 회복시키기 때문으로 사료된다. MF 막에서 대부분의 부유물질을 제거한 결과 처리수의 총유기탄소(TOC) 제거율이 75 % 이상으로 나타나 폐액의 총유기탄소는 대부분 입자성물질에 기인하는 것으로 판단된다. MF 막 처리수를 NF 막으로 0.5 m³/hr의 유량과 8 kgf/cm²의 압력으로 공급한 결과 0.06 m³/hr의 처리수를 배출하여 12 %의 회수율을 나타내었다. 실험기간 1일 동안 약 1.5 m³의 처리수를 생산하였으며, 처리수 중에 Ag-110m은 대부분 제거가 되었음을 확인하였다. 장시간의 운전에도 압력변화의 폭이 매우 적게 나타난 것은 NF 막을 오염시키는 입자성물질이 MF 리막에 의하여 거의 제거가 이루어 졌으며, NF 막에서 제거가 이루어지는 물질의 함량이 비교적 적게 존재하여 대부분의 물질이 처리수로 배출된 것으로 판단된다. 일반적으로 NF 막은 총유기탄소를 50 % 이상 제거하는 것으로 보고하고 있으나[3], 본 실험에서는 비교적 낮은 제거율인 45 % 정도의 제거율을 보였다. 이는 분자구조가 비교적 단순한 저분자 유기물이 MF 막 처리수에 주종을 이루고 있기 때문으로 생각된다. Ag-110m을 제외한 핵종을 함유한 NF 막 처리수를 SIES 장치에 0.001 m³/min의 유량으로 공급하였다. 1일 동안 약 1.5 m³의 처리량을 배출하였으며, 대부분의 핵종의 제거가 이루어졌음을 확인하였다. 처리공정별 실험에서 FDT 폐액(0.3 m³)을 처리할 때 보다 핵종을 다량 함유한 WHT 폐액(1.5 m³)을 처리하였음에도 핵종의 제거효율은 우수하였다.

4. 결론

원자력발전소에서 발생된 방사성 폐액을 MF-NF-SIES 공정으로 처리한 결과,
- 분리막을 도입하여 폐액 수질을 원하는 수준으로 개선이 가능하였다.
- 효과적인 공정의 배열은 MF-NF-SIES 공정 순으로 확인하였다.
연속운전의 결과는 향후 현장에 실 규모의 폐액 처리 설비의 설계자료로 활용될 예정이다.

5. 참고문헌

- [1] Trisep Corporation, "Nanofiltration pilot plant studies", In Filtration & Separation, November 1993, pp 632-624.
- [2] Morris, R.A., Watson, I. and Tsatsaronis, S., "The use of microfiltration to removal colour and turbidity from surface waters without the use of chemical

coagulant", In " *Effective Membrane Process-New perspective*", R. Paterson(ed), Mechanical Engineering Publications Ltd, London, 1993.

[3] Jacangelo, J.C. and Laine, J.M., "*Evaluation of Ultrafiltration Membrane Pretreatment and Nanofiltration of Surface Waters*", AWWA Research Foundation and American Water Works Association, 1994.

[4] Conlon, W.J. and McClellan, S.A., "*Membrane softening : A treatment process comes of age*", Journal of the American Water Works Association, 81(11), Nov. 1989, p 48.

[5] Taylor, J.S., Thompson, D. M., Carswell, J.K., "*Applying Membrane Processes to Groundwater Sources for Trihalomethane Precursor Control*", Journal of the American Water Works Association 79(8), August, 1987.

[6] Wilbert Odem, "*Nanofiltration of A High Salinity Groundwater on the Hopi Reservation*".

, Water Treatment Technology Program Report No. 3, Contract No. 1425-3-CR-81-19540, may, 1995.

[7] A. Chihanti, D.E. Akretche, H. Kerdjoudj, M. Persin, J. Sarrazin, "*Behaviour of Copper and Silver in Complexing medium in the course of nanofiltration on both mineral and organic membrane*", Separation and Purification Technology, 22(23), 2001, pp. 543-550.

[8] 양주동, "한외여과막을 이용한 도금폐수 중 계면활성제에 흡착된 금속이온 분리", 호서대학교 석사학위논문, 1999.

[9] Samer Adham, and Rion P. Merlo., " *Membrane Bioreactor for Wastewater Reclamation-Phase 2*", Desalination Research and Development Program Report No. 60, Agreement No. 98-FC-81-0031, Nov, 2000.

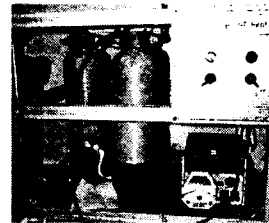
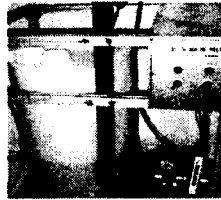


Fig. 1 정밀여과장치 Fig. 2 나노분리막 장치 Fig. 3 이온교환 장치

Table 1. 장치의 사양

구 분	정밀여과분리막 (SuperMAK [®] , (주)이엔이)	나노분리막 (NF, Filmtec)	이온교환장치 (SIES, 발전소)
사 양	· 공극 : 0.2 - 0.4 μ m · 여과면적 : 10m ²	· 공극 : 0.0001 μ m · 여과면적 : 2.6m ²	· 공극 : 12-50 mesh · 충전량 : 0.025 m ³

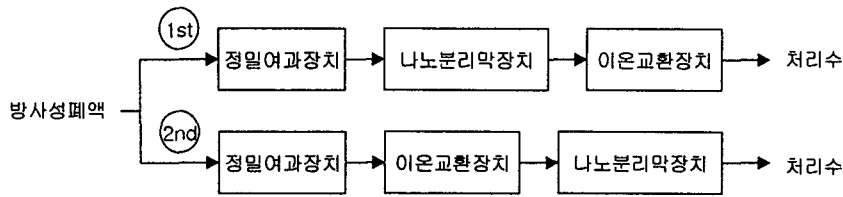


Fig. 4 방사성 액체 폐액의 처리 공정도

Table 2. 방사성폐액의 수질

구 분	pH	탁도 (NTU)	SS (ppb)	총방사능 (μCi/cc)
FDT	6.41	58.9	38,000	1.534E-04
WHT	5.98	42.6	23,100	2.499E-02

Table 3. 정밀여과분리막- 나노분리막-이온교환수지 공정 처리수질

구 분	FDT 폐액	MF 처리수	NF 처리수	SIES 처리수
pH	6.41	7.28	6.29	-
탁도(NTU)	58.9	0.77	0.05	-
SS(ppb)	38,000	720	30	-
총방사능 (μCi/cc)	2.499E-03	1.354E-03	2.067E-04	N/D

Table 4. 정밀여과분리막-이온교환수지- 나노분리막 공정 처리수질

구 분	WHT 폐액	MF+SIES 처리수	NF 처리수
pH	5.98	7.04	5.59
탁도(NTU)	42.6	0.55	0.05
SS(ppb)	23,100	1,140	10
총방사능(μCi/cc)	2.499E-03	8.256E-03 (A-110m 검출)	2.067E-04 (C0-58 검출)

Table 5. 연속공정 처리수질

구 분	WHT 폐액	MF 처리수	NF 처리수	SIES 처리수
탁도(NTU)	45.65	0.12	0.05	-
SS(ppb)	20,300	722	279.5	-
TOC(mg/l)	21.74	5.677	2.56	-
총방사능(μCi/cc)	1.065E-01	5.461E-02	3.62E-02	N/D