

혼합폐수지의 양이온 및 음이온 수지 분리 및 핵종분포특성

박 순 달 • 김 정 석 • 김 종 구 • 지 광 용

한국원자력연구소 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

nsdpark@kaeri.re.kr

원자력발전소에서는 원자로의 냉각재, 감속재 및 열수송계통 등의 일차계통과 기타 이차계통의 수처리를 위해 많은 양의 유기합성 이온교환수지를 사용하고 있다. 원자력발전방식 및 원자로의 계통에 따라 사용하는 이온교환수지의 종류가 다르다. 예를 들면 CANDU형 원자력발전소의 감속 재계통에는 H형의 강산성양이온교환수지와 OH형의 음이온교환수지가 혼합된 Amberlite IRN-150 L/C 이온교환수지를 사용한다. 또한 열수송계통에는 Li형의 강산성양이온교환수지와 OH형의 음이온교환수지가 혼합된 IRN-154 L/C 이온교환수지를 사용하며 LiOH에 의해 pH 10.0-10.5로 유지된다. 이온교환수지는 일정시간 사용후 폐수지로 방출되며 폐수지의 발생량은 잡고체를 제외한 중저준위방사성폐기물의 약 60% 이상이 된다. 폐수지에는 수처리과정에서 제거된 여러 가지 종류의 미세고형물질 및 이온성물질이 흡착되어 있다. CANDU형 원자력발전소에서 핵연료를 제외한 중저준위방사성폐기물의 연간 총방사능의 약 80%가 폐수지에 기인하는 것으로 보고되어 있다. 폐수지의 발생원에 따라 핵종분포의 특성이 달라진다. 원자로의 냉각재 수처리에 사용된 폐수지의 핵종분석결과에 의하면 ^{14}C 이 20 Ci로 가장 높았으며 반감기 20년 이상의 핵종중 ^{90}Sr 3.2 Ci, ^{137}Cs 2.1 Ci, ^{151}Sm 0.041 Ci 및 기타 알파핵종(>Pb)이 0.081 Ci 함유되어 있었다.

^{14}C 은 반감기 5370년의 초장반감기 핵종이며, 환경중 이동성이 높고 먹이사슬에 용이하게 유입될 수 있는 주요 내부피폭핵종이다. 따라서 고농도의 ^{14}C 이 흡착되어 있는 폐수지의 영구처분시 단순 매립처분 방식은 고려되지 않고 있다. 폐수지의 보관비용을 줄이고 처분의 경제성을 높이기 위해 폐수지의 감용화 및 ^{14}C 을 제거하여 처분하기 위한 연구가 진행되고 있다. 폐수지의 감용화 방법으로는 건조, 기계적인 압축, 산농축, 폐수지의 재이용 및 연소 등이 있다. ^{14}C 은 원자로의 일차냉각재와 감속재 등의 수화학 환경에서 주로 CO_3^{2-} 및 HCO_3^- 의 음이온으로 존재하며 90% 이상의 ^{14}C 이 음이온교환수지에 의해 제거된다. 따라서 폐수지를 양이온과 음이온교환수지로 분리함으로써 고농도의 ^{14}C 을 함유한 폐수지의 양을 그만큼 줄일 수 있을 것이다. 또한 폐수지의 재이용시에는 양이온 및 음이온교환수지를 완전히 분리해야 이온누설에 의한 오염을 방지할 수 있다. 따라서 폐수지의 재이용시 선행공정으로 혼합폐수지의 양이온 및 음이온수지 분리공정이 요구된다. 혼합수지의 양이온 및 음이온수지로의 분리방법에는 역세법, 부유침강법 등이 있다. 이중 부유침강법은 적절한 비중의 전해질 혹은 비전해질 용액을 사용하여 양이온수지($1.28 \text{ g}/\text{Cm}^3$)와 음이온수지($1.08 \text{ g}/\text{Cm}^3$)의 비중차로 분리하는 방법이다. 전해질용액으로는 NaOH 혹은 H_2SO_4 등을 사용하며 비전해질용액으로는 설탕물이 사용된다.

본 연구에서는 연구용 원자로의 일차냉각재에 사용된 폐수지를 양이온 및 음이온 분리실험에 사용 하였으며 분리된 양이온 및 음이온교환수지의 핵종분포 특성을 조사하였다. 본 연구에 사용한 분말형 혼합이온교환수지 Amberlite IRN 150L/C의 사양을 표 1에 나타내었다. 사용하지 않은 혼합수지를 15 wt% NaOH ($1.15 \text{ g}/\text{Cm}^3$), 40 wt% 설탕물($1.16 \text{ g}/\text{Cm}^3$) 및 50 wt% 설탕물($1.20 \text{ g}/\text{Cm}^3$)로 분리한 결과 원심분리하지 않은 상태에서 잘 분리되었다. 50 wt%의 설탕물을 사용하여 연구용 원자로의 일차냉각재에서 발생된 폐수지를 분리한 결과 양이온 44%, 음이온 56%로 이온교환수지의 사양과 비슷하였다. 혼합 및 양이온, 음이온수지로 분리한 폐수지의 핵종 분석결과를 표 2에 나타내었다. 표 2에서 보는 바와 같이 양이온수지에는 ^{137}Cs 이 가장 높은 농도로 검출되었으며 음이온수지에는 ^{65}Zn 이 가장 높은 농도로 검출되었다. ^{125}Sb 은 음이온수지에서만 검출되었으며 연구용 원자로의 일차냉각재 수화학 환경에서 Sb이 음이온으로 존재하는 것으로 추정된다. 혼

합 및 양이온, 음이온으로 분리한 폐수지의 ^{14}C 및 ^3H 분석결과를 표 3에 나타내었다. 표 3에서 알 수 있는 바와 같이 ^{14}C 은 대부분 음이온교환수지에 흡착되어 있었다.

Table 1. Specification of Amberlite IRN 150L/C mixed ion exchange resin

특성	양이온수지(IRN77)	음이온수지(IRN78)
작용이온	H^+	OH^-
교환기	$-\text{SO}_3\text{H}$	$-\text{CH}_2\text{N}(\text{CH}_3)_3\text{OH}$
총이온교환량	$>1.9 \text{ eq/L}(\text{H}^+)$	$>1.2\text{eq/L}(\text{OH}^-)$
단위용량당부피	1.25 mL/g dry	1.51 mL/g dry
혼합비(Vol)	4	6
밀도	1.28 g/mL	1.08 g/mL

Table 2 Gamma spectrometry analysis results of spent ion exchange resin

Nuclides	Mixed(Bq/g)	Cation(Bq/g)	Anion(Bq/g)
^{144}Ce	1.72E3	4.30E3	3.19E2
^{60}Co	3.04E3	8.15E3	1.69E2
^{134}Cs	4.67E2	1.31E3	6.16
^{137}Cs	3.90E3	1.09E4	4.58E1
^{54}Mn	1.84E2	5.23E2	1.36E2
^{125}Sb	ND	ND	4.14E2
^{65}Zn	8.29E2	2.22E3	5.58E2

Table 3 ^{14}C and ^3H analysis results of spent ion exchange resin

Sample	$^{14}\text{C}(\text{Bq/g})$	$^3\text{H}(\text{Bq/g})$
Mixed resin	751	26
Cation resin	88	
Anion resin	1058	