

## 폐 이온교환수지의 $^{14}\text{C}$ 측정법에 대한 고찰

김진길, 이상태, 김창환, 김민재  
 하나검사기술(주), 경기도 하남시 감북동 412-5  
[freeflying04@naver.com](mailto:freeflying04@naver.com)

### 1. 서론

이온교환수지는 원자력시설에서 발생하는 다량의 공정수 처리와 폐기물 유출물 계통에서 오염된 방사성 물질을 제거하기 위해 사용되고 있다. 폐수지의 최적 처리와 처분을 위해서는 방사성 핵종의 종류와 함량을 알아야 할 필요가 있다.  $^{14}\text{C}$ 는 긴 반감기, 잠재적인 농도 및 환경으로의 이동성 때문에 정량화하는데 특별한 관심을 가져야 하는 방사성핵종( $T_{1/2}=5730\text{years}$ ) 중의 하나이다. 처분된 방사성폐기물에서  $^{14}\text{C}$ 의 환경적인 거동은 존재하는 화학형에 따라서 상당히 다르다. 따라서 총  $^{14}\text{C}$  방사능뿐만 아니라 화학형을 규명하는 것은 매우 중요하다. 경수로(LWRs)에서의  $^{14}\text{C}$  생성은 주로 핵연료, 구조재 및 1차 냉각재에서 생성된다. 1차 냉각재에서 생성된  $^{14}\text{C}$ 의 일부는 배기체 처리계통(off-gas system)을 통해서 빠져나가고, 일부는 계통수 정화계통의 수지 내에 머무르게 된다. 이 논문의 목적은 원자력발전소에서 사용되는 다양한 공정수의 정화용 이온교환수지에 함유된  $^{14}\text{C}$ 의 측정을 위해 그간 개발 및 사용된 다양한 분석법들에 대해 고찰하기 위함이다. 본 논문에서는 유기화학형의  $^{14}\text{C}$ (예: hydrocarbons)와 무기화학형의  $^{14}\text{C}$ (예: carbonates)와 관련된  $^{14}\text{C}$ 의 화학종들의 분석법들을 검토하였으며 검토된 문서들 중 일부는 해외 원전에서 사용된 이온교환수지에 대한 측정결과도 포함하고 있다. 해외 원전에서 사용된 분석기술에 관한 내용과 일차냉각재 및 이온교환수지에서의  $^{14}\text{C}$ 의 화학형에 대해 조사한 내용을 기술하였다.

### 2. $^{14}\text{C}$ 화학종의 형성

#### 가. 1차 냉각재중의 $^{14}\text{C}$ 화학형

원자로형과 운전방식에 따라 1차 냉각재에 나타난  $^{14}\text{C}$ 의 화학형은 상당한 차이가 있다. PHWR(가압중수로)에서의  $^{14}\text{C}$ 는 대부분  $^{14}\text{CO}_2$ 의 화학형이고 PWRs(경수로)에서는 높은 환원환경에 놓여 있기 때문에  $^{14}\text{C}$ 는 거의 hydrocarbons 또는  $^{14}\text{CO}$ 로 나타나며 적은 분율의  $^{14}\text{CO}_2$ 와 carbonates 형으로 존재한다. Rosset et al(1994)은 높은 온도 및 환원조건( $300^\circ\text{C}$  및 pH 7.1에 있는 methane 및 methanol)에 있는 원자로 냉각재중의  $^{14}\text{C}$ 의 존재가능 형태는 원자로가 차가워 졌을 때 methane은 공기 중으로 빠져나가고,  $^{14}\text{C}$ 의 화학형은 methanol, hydrogen carbonate, carbonate 및 formiate에서 발견될 수 있다고 언급하고 있다. Matsumoto et al(1995)는 PWRs 냉각재에서의 유기  $^{14}\text{C}$  화학형은 주로 acetaldehyde, methanol, ethanol, acetone 및 acetic acid로 구성되어 있을 것으로 예측하였으며 Lundgren et al은 환원조건 하에서 methane 형성 및 formaldehyde와 formic acid의 형성은 가능할 것으로 결론짓고 있으며 산화환경 조건 하에서는 주로 산화된 탄소형인  $^{14}\text{CO}_2$ 와  $\text{HCO}_3^-$  형으로 존재할 것으로 예측하였다.

#### 나. 1차냉각재 이온교환수지중의 $^{14}\text{C}$ 화학형

이온교환수지상의 다양한 탄소종의 머무름(retention)에 대해선 아직까지도 과학자들 사이에 다양한 견해들을 지니고 있다. Martin(1986)의 보고서에 의하면, PWRs 원전에서 사용되는 혼상수지탑에 포집된  $^{14}\text{C}$ 는 carbonate형이라고 이제까지 믿어왔으나 hydrocarbons 화학형이 혼상수지에서도 나타나는 있을 수 없는 현상에 대해 기술하고 있다. Vance et al(1995)에 따르면, PWR과 일부 BWR에 사용된 1차냉각재 탈염탑 수지에서의  $^{14}\text{C}$ 의 대부분은 유기물 형태가 우세한 것으로 언급하고 있으며 이는 전통적인 이온교환 반응이라기보다는 흡착공정에 의해 발생된 것으로 주장하고 있다. Torstenfelt는 PWR의 폐수지에서 유.무기형의  $^{14}\text{C}$ 가 모두 검출되는데 유기분율이 더 우세하고, 무기분율은 일부 경우에만 우세하게 나타났으며 이러한 변화는 주로 원자로 냉각재중의 수소기체의 분압에 의존된다고 기술하였다. G Matsumoto et al(1995)는 일본 PWRs 원전의 냉각재중에  $^{14}\text{C}$ 가 acetaldehyde 40%, methanol 20%, ethanol과 acetone 30% 그리고 acetic acid 2%로 구성되어 있는 것으로 평가하였다. Matsumoto et al.은 일반적으로 alcohol이나 acetone으로 방출되는  $^{14}\text{C}$ 의 대부분은 높은 휘발성 때문에 폐기물을 포장,처리하는 동안에 배기체 연돌을 통해 빠져나가며 그로인해 저준위폐기물중에 함유된  $^{14}\text{C}$ 는 주로 carbonate, acetaldehyde 및 acetic acid 화학형이라 여기고 있다. 요약하면, 이온교환수지탑에 포획되어있는  $^{14}\text{C}$ 의 분율 크기와 화학적 조성에 대한 불확실성은 측정기술의 복잡성과 신뢰할 만한 분석자료가 충분히 축적

되어 있지 않아 여전히 불확실하다는 것이다.

### 3. 검토된 이온교환수지중의 $^{14}\text{C}$ 측정법

원자력발전소에서 계통 정화용으로 사용되는 이온교환수지중의  $^{14}\text{C}$  측정을 위해 그간 다양한 분석기술들이 개발되어져 왔으며 몇몇 분석법들은 실적용을 위해 심도 깊게 다루어져 왔다. 총  $^{14}\text{C}$  방사능 및 무기·유기 화학형의 분율과  $^{14}\text{C}$  화학종의 형성과정을 평가하기 위한 방법들이 검토되었다. 이들 분석법 중에서 가장 중요한 두 가지 분석법은 산 처리와 연소기술이며 Salonen/Snellman(1981, 1982, 1985)는  $^{14}\text{CO}_2$  형태로 있거나 hydrocarbons 및 CO 형태로 있는  $^{14}\text{C}$ 의 동시 측정법 사용하여 이온교환수지중의  $^{14}\text{C}$ 를 분석하였다. 이 시스템의 개략도는 그림 1에 나타내었다.

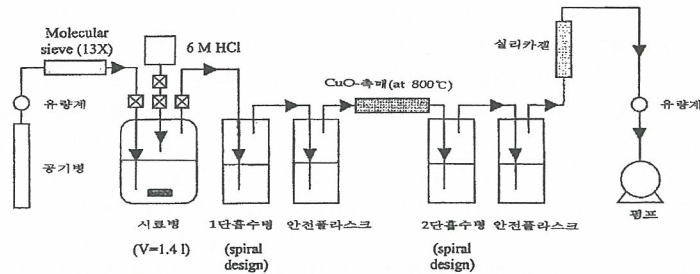


그림 1. 이온교환수지의  $^{14}\text{C}$  화학형의 분리 실험에 사용된 장치의 공정도(Snellman and Salonen(1981))

### 4. 결 론

본 논문에서 제시된 정보를 기본으로 유·무기화학형의  $^{14}\text{C}$ 를 측정하기 위한 산 제거 장치는 물론 연소시스템을 설계, 제작하고 실험할 계획이다. 산 제거 장치는 Salonen and Snellman의 장치를 참조하여 구성할 예정이며, 연소장치는 Speranzini and Buckley의 원리를 인용하여 제작하고자 한다. 또한, 다양한  $^{14}\text{C}$  표지화합물을 이용한 광범위한 실험을 통해 각각의 주요 부품별 기능을 보증하기 위해 행해질 것이다. 향후 최적화된  $^{14}\text{C}$  실험 장치를 최종 선정하여 국내 처분장에 반입되는 폐기물과 원전에서 발생하는 폐수지중의  $^{14}\text{C}$ 를 분석, 평가하는데 활용하고자 한다.

### 참고문헌

- [1] Asa Magnusson "  $^{14}\text{C}$  Produced by Nuclear Power Reactors" Dept. of Physics Lund University. 2007