

초임계 이산화탄소를 이용한 방사성 폐수지 중의 ^{60}Co 추출기술

성진현, 강덕원, 김승일, 김현기, 허준, 성기홍*, 하석중*, 박광현**

한국정수공업(주), 경기도 시흥시 정왕동 1281-2

*한국수력원자력(주), 전라남도 영광군 홍농읍 홍농로 846

**경희대학교, 경기도 용인시 기흥구 서천동 1

sungjh@haji.co.kr

1. 서론

증기발생기 취출수는 계통 순환 운전시 발생하는 슬러지 침적물이 SG 튜브 sheet 상단에 쌓이지 않도록 일정 유량으로 배출시키는 계통으로 취출수의 재사용을 위한 정화수지탑과 함께 운전되고 있다. 장기 운전에 따른 세관의 미세균열 발생시에는 방사능을 띤 1차 계통수도 미량 동반되어 빠져나오게 되는데 정화수지탑은 오염확산을 방지할 목적으로도 사용되고 있다. 폐수지는 호기당 연간 약 5,000ℓ 정도 발생하고 있으며 세관누설시에 발생한 폐수지에는 일부 방사능 물질(^{60}Co , ^{137}Cs , 등)이 함유되어 있어 별도로 보관·관리해 오고 있다. 본 연구에서는 폐수지 중에 함유된 ^{60}Co 핵종을 분리·추출하여 자체처분이 가능한 수준까지 낮추어 폐기물 발생량의 저감과 처분비용의 절감을 위한 목적으로 예비 실험을 수행하였다. 폐수지의 자체처분 유도를 위한 제염실험으로 10% 황산수용액만을 이용한 재생법과 2% 및 0.2% 황산수용액과 초임계 이산화탄소를 이용한 추출법을 적용해 방사성 폐수지로부터 대상 핵종의 추출 가능성에 대한 비교평가를 실시하였다. 용매로 사용되는 이산화탄소는 비극성 물질이므로 ^{60}Co 핵종을 용해시키지 못하기 때문에 초임계 이산화탄소를 사용한 실험에서는 ^{60}Co 핵종의 추출에 효과적인 Cyanex-272와 DEA(Diethylamine)를 보조제로 사용하였다[1-4].

2. 실험 및 결과

2.1 방사성 폐수지 시료 제조 및 분석

원전 내에 보관중인 폐수지에서 약 600g씩 4 set를 채취하여 분석한 후, 그 중에서 ^{60}Co 의 방사능 농도가 높은 폐수지 시료에서 다시 8g씩 4 set를 재분석하여 실험용 시료로 사용하였다.

실험전·후 폐수지의 방사능 농도는 감마핵종분석기(CANBERRA, HPGe Detector)로 측정하였으

며 그 값을 Table 1에 정리하였다.

2.2 황산수용액만을 이용한 폐수지 제염실험

폐수지 8g씩 두 set를 각각 10% 황산수용액 100ml에 30분 동안 침지시켜 ^{60}Co 핵종을 제거한 후 방사능 농도를 측정하여 Table 1의 실험 1과 2에 나타내었다.

2.3 황산수용액과 초임계 이산화탄소를 이용한 폐수지 제염실험

황산수용액과 초임계 이산화탄소를 이용하여 폐수지 중의 ^{60}Co 핵종을 추출하기 위한 장치들 Fig. 1과 같이 구성하여 설치하였다.

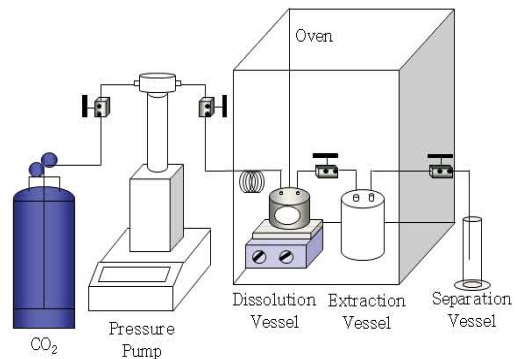


Fig. 1. Supercritical CO_2 extraction system

추출용기는 125ml의 용량으로 300bar까지 사용할 수 있도록 SUS 재질로 제작하여 100℃까지 가열할 수 있게 오븐 안에 설치하였다. 또한 20ml 용량으로 300bar까지 사용할 수 있는 SUS 재질의 추출제 용해용기를 제작하여 오븐 내 추출용기 전단에 설치하였다. 용해용기에는 투시창을 설치하여 초임계 이산화탄소에 추출제가 용해되는 모습을 관찰할 수 있도록 하였고 이산화탄소는 정량가압펌프를 이용하여 실험 압력으로 일정하게 공급될 수 있도록 구성하였으며 폐수지로부터 추출된 ^{60}Co 핵종이 이산화탄소에서 분리되도록

분리용기를 오븐 외부의 후드 안에 설치하였다.

첫 번째 실험은 2% 황산수용액과 초임계 이산화탄소를 이용하여 폐수지로부터 ⁶⁰Co 핵종을 추출 하였다. 8g의 폐수지와 2% 황산수용액 50ml를 추출용기에 넣고, 추출제인 Cyanex-272와 DEA는 투시창이 설치된 용해용기에 넣었다. 먼저 60℃의 온도에서 이산화탄소를 200bar로 가압하여 20분 동안 교반하면서 Cyanex-272와 DEA를 초임계 이산화탄소에 용해시켰다. 그 다음에 60℃의 온도에서 Cyanex-272와 DEA가 용해된 초임계 이산화탄소를 200bar의 압력을 유지시키면서 폐수지와 황산수용액이 들어 있는 추출용기에 40분간 연속적으로 통과시켜 ⁶⁰Co 핵종을 추출하였다. 실험후 폐수지와 황산수용액의 방사능 농도를 측정하여 Table 1의 실험 3에 나타내었다.

두 번째 실험은 0.2% 황산수용액과 초임계 이산화탄소를 이용하여 폐수지로부터 ⁶⁰Co 핵종을 추출하였다. 8g의 폐수지와 0.2% 황산수용액 50ml를 추출용기에 넣은 후, 초임계 추출 조건은 첫 번째 실험과 동일하게 수행한 후 방사능 농도를 측정하여 Table 1의 실험 4에 나타내었다.

2.4 폐수지 제염실험 결과

황산수용액 및 초임계 이산화탄소를 이용한 폐수지로부터 ⁶⁰Co 핵종을 제염한 결과를 아래의 Table 1에 정리하였다.

Table 1. The decontamination results of radwaste resin using sulfuric acid and supercritical CO₂.

Run No.	Solvent	Activity of ⁶⁰ Co (μCi/g)			DF of Resin
		Original	After extraction		
		Spent Resin	Spent Resin	H ₂ SO ₄ Sol'n	
1	H ₂ SO ₄ only	2.08E-5	3.56E-6	-	5.84
2		6.73E-5	7.47E-6	-	9.01
3	H ₂ SO ₄	2.33E-5	MDA	MDA	∞
4	+ SCCO ₂ ※	1.58E-5	MDA	MDA	∞

※ SCCO₂ : Supercritical carbon dioxide

황산수용액만을 이용한 폐수지에서는 ⁶⁰Co 핵종이 검출되었으나 황산수용액과 초임계 이산화탄소를 함께 이용한 폐수지와 황산수용액 모두에서는 ⁶⁰Co 핵종의 방사능 농도가 모두 MDA값 이하임을 확

인하였다.

3. 결론

황산수용액과 초임계 이산화탄소를 이용하여 방사성 폐수지를 제염할 경우 황산수용액만을 이용할 때보다 낮은 농도의 황산을 사용하여도 ⁶⁰Co 핵종을 더욱 잘 제거할 수 있으며 황산수용액 중의 ⁶⁰Co 핵종도 함께 제거하므로 2차폐기물을 거의 발생시키지 않음을 확인할 수 있었다. 따라서 황산수용액과 초임계 이산화탄소를 이용하여 ⁶⁰Co 핵종을 추출하는 기술은 자체처분을 위한 방사성 폐수지의 제염에 매우 유용하게 사용될 수 있을 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

[1] Wai, C. M., Lin, Y., Brauer, R. and Wang, S. (1993), *Talanta* 40, p 1325.
 [2] Lin, Y. and Wai, C. M. (1994), *Anal. Chem.* 66, p 1971.
 [3] Erkey, C. (2000), *J. Supercritical Fluids* 17, p 259.
 [4] 성진현, 김승일, 김현기, 강덕원, 박광현, 2011 한국방사성폐기물학회 춘계학술대회 논문요약집, p 305.