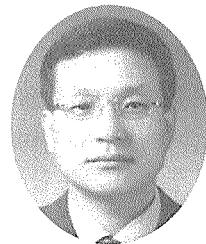


- 2004년도 방사선·방사성동위원소 이용진흥 연차대회

## 방사선방호용품 개발현황

- 방사성 요오드 제거 기술 -



이 후근

(주)카엘 대표이사

### 1. 서론

방사성 요오드는 원자력발전소 및 원자력 시설에서 발생되는 방사성 핵종으로서 인체 내에 흡입될 경우 갑상선에 축적되므로 환경 보호 및 방사선작업종사자의 안전을 위해서도 반드시 처리되어야 한다.

원자력시설로부터 발생되는 기체 방사성 물질은 그 화학성분이 다양하며 각 성분의 특성에 적합한 각각의 처리방법이 요구되기 때문에 복잡하고 다양한 처리공정이 요구된다. 더구나 원자력시설의 사고시에는 방사성 배기체 물질이 다량 발생할 뿐만 아니라 기체 방사성물질 처리계통의 운전도 고온, 고습도로 달라지기 때문에 처리공정도 이에 상응할 수 있도록 설계되어야 한다.

방사성 요오드의 발생형태는 원자력발전소의 안전측면에서 가장 중요한 것으로 발전소의 정상운전 및 사고시에 운전원의 방사선 피폭을 결정하는 동위원소인  $^{131}\text{I}$ (반감기 : 8.05일)과 사용후핵연료 이용시설에서 냉각 후에 발생되는 핵분열 생성물 중 대부분을 차지하는(약 87%)  $^{129}\text{I}$ (반감기 :  $1.7 \times 10^7$ 년)과  $^{127}\text{I}(\text{Stable})$ 로 알려져 있다.

한편 DOG(용해조 배기체)에서 발생되는

방사성 요오드의 주 형태는  $\text{I}_2$ 인데 이 중의 일부는 처리공정상 다른 성분들과 반응하여 다른 형태의 요오드를 생성한다. VOG(공정 배기체)에서는 많은 양의 유기 요오드 및 요오드 화합물이 생성될 수 있는데 현재까지 알려진 요오드 화합물로는  $\text{I}_2$ , HOI, ICN,  $\text{CH}_3\text{I}$  및 다른 알킬 요오드 화합물 등이 있다.

### 2. 방사성 요오드 제거 기술

#### 가. 활성탄 흡착기술

활성탄은 방사성 요오드 제거용 고체 흡착제 중 가장 널리 사용되는 것으로 현재 원자력발전소에서 방사성 요오드를 제거하기 위하여 첨착 활성탄을 사용하고 있다. 첨착물질은  $\text{CH}_3\text{I}$ 를 높은 습윤 분위기 하에서 제거할 수 있어야 하며 현재까지 가장 광범위하게 사용되는 첨착물질로는 KI 및 TEDA(TriEthyleneDiamine) 등으로 알려져 있다.

원자력발전소의 배기체 처리에는 활성탄 필터가 세계적으로 널리 이용되고 있다. 그러나 활성탄은 다음과 같은 이유 때문에 사용후핵연료 이용시설의 배기체 처리시설에 사용하는 것은 적합하지 않다.

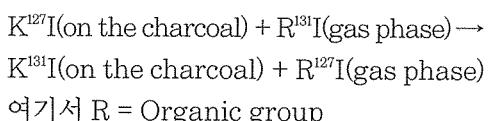
- NOx가 존재할 경우 산화반응에 의해 활

성탄이 소모되고 화재위험이 있으므로 사용후핵연료 이용시설에 사용이 제한되어 있다.

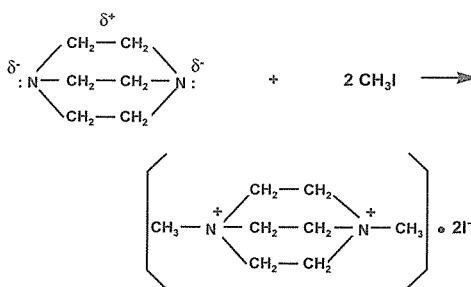
- 건식 고온 배기체 공정의 고온에서는 흡착된 요오드가 쉽게 탈착된다.
- 활성탄의 발화온도가 낮다.
- 배기체 처리에는 활성탄의 사용이 위험하고 방사성 요오드가 흡착된 활성탄은 장기처분에 적합하지 않다.
- 활성탄은 처리매질의 부피감소 및 처리 후 안정화 측면에서 적합하지 않다.

KI나 TEDA가 첨착된 활성탄에 의한 원소 및 유기 요오드의 제거 기구는 다음과 같다.

- $K^{127}I$  첨착활성탄에서 유기 요오드는 물리흡착과 동위원소 교환과정에 의해서 포집된다.



- 활성탄에 TEDA가 첨착되어 있을 경우 방사성 요오드는 다음과 같은 반응에 의하여 4가 암모니움염을 형성한다. 형성된 염은 활성탄에 강하게 부착되어 방사성 요오드가 포집된다.



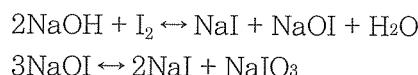
원자력 발전소 배기계통에 사용되는 활성탄 필터는 보통 KI, TEDA로 침착되어 사용되고 있다. TEDA가 침착된 활성탄의 경우 100°C 이상에서는 증기압이 높아져서 활성탄으로부터 TEDA의 증발이 높아져 발화의 가능성이 있으나, KI가 침착된 활성탄의 발화점은 TEDA에 비해 높다. 이러한 이유 때문에 TEDA가 침착된 활성탄은 70~120°C 사이에서 운전하고, KI가 침착된 활성탄은 약 200°C 정도에서 운전이 가능하다.

#### 나. 기액 흡수법

기액 흡수법에는 알칼리 흡수, Indox, Mercurex 등의 공정이 있으며, 알칼리 흡수법은 원소요오드의 제거에는 효율이 우수하나 유기요오드 제거에 사용하기는 곤란하지만 많은 재처리시설에서 사용중인 기술이다. Indox나 Mercurex 공정은 원소요오드뿐 아니라 유기요오드의 제거효율도 높아 재처리시설에서 요오드 제거에 적용할 수 있으나 상용규모의 실증시험이 요구된다.

##### (1) 알칼리 흡수법

알칼리 흡수법은 보통 1~2 M NaOH 용액을 충전탑에 통과시켜 다음의 반응식과 같이 원소요오드를 Iodate와 Iodide로 변환시키는 공정을 포함하고 있다.

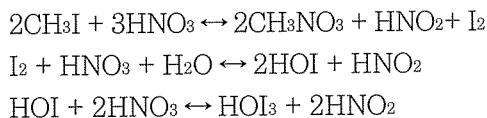


흡수액으로는 NaOH 보다 KOH가 더 유용하며, 티오향산나트륨이나 하이드라진과 같은 환원제가 존재하면 원소요오드의 제거 효율은 더욱 좋아진다.

## (2) Indox 공정

Indox 공정은 비교적 높은 제염효율이 요구되는 경우에 현재까지 일차적인 방사성 요오드 제거를 위한 가장 가능성이 있는 제거방법으로 알려져 있다. Indox 공정은 기액접촉 장치에서 hyperazeotropic  $\text{HNO}_3$ (>20M)을 사용하며 배기체로부터 원소요오드와 유기요오드를 흡수하여 비휘발성 화학형태로 만들어서 제거하는 방법이다. Indox 공정은 20~23M  $\text{HNO}_3$  흡수액을 사용하기 때문에 내산성이 있는 재료를 선정해야 하는 문제를 가지고 있다.

Indox 공정은 배가스를 기포 포종탑을 통하여 20~22 M  $\text{HNO}_3$  흡수액에서의 화학반응은 다음과 같다.



## (3) Mercurex 공정

재처리 배출기체중 요오드를 제거하기 위해 초기에 개발된 공정중의 하나로서 충전탑이나 포종탑에서  $\text{Hg}(\text{NO}_3)_3-\text{HNO}_3$ 을 세척액으로 사용하는 공정이다. 이 공정은 유기 및 원소요오드 제거에 적용할 수 있다. 이공정은 상용공정에서 확증되지 않았으므로 보다 더 많은 연구가 요구된다.

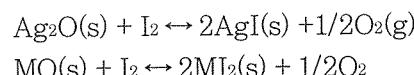
## 다. 무기 고체 흡착제 흡착기술

### (1) 금속치환 Zeolite( $\text{AgX}$ )

요오드와 친화성이 있는 은( $\text{Ag}$ )이나 다른 금속으로 치환된 Zeolite는 원자력시설에서 발생되는 요오드를 제거하는데 활성탄 대신

사용하기 위해 제안된 무기 고체 흡착제이다.

$\text{Ag}$ 로 치환된 Zeolite에 의한 요오드 흡착의 화학기구는 Thomas 등에 의해서 제안된 반응식으로 다음과 같다.



Zeolite를 요오드 제거에 사용하는 것은 비연소성이고, 폭발의 위험이 적어 안전하고 처분에 적합하다는 장점이 있다.

## (2) 금속치환 Modenites( $\text{AgZ}$ )

요오드 제거에 사용되는  $\text{AgX}$ 는 질산증기에 의해 Zeolite가 파괴되므로 이 단점을 보완할 수 있는 다른 고체 흡착제의 개발이 요구되어 여러 가지 물질을 조사한 결과 가장 적합한 것은  $\text{AgZ}$ 로 불리는 Modenite 형태의 Silver Zeolite로 판명되었다. Modenite는 공업적으로  $\text{Na}-$ 형태인 Norton zeolon 900이 생산되고 있으며, 이온교환방법에 의해서  $\text{Ag}$  형태로 전환된다.

## 3. 방사성 요오드 제거 기술 응용

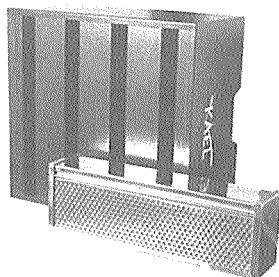
방사성 요오드 제거기술 중에서 가장 보편적으로 사용되고 있는 첨착활성탄을 이용한 응용제품에 대해서 언급하였다.

## 가. Charcoal Filter

### (1) Type I CELL

흡착 CELL은 2인치 베드 깊이로 V-베드 형태로 구성되어 있으며, 케이스나 타공판의 재질은 SUS 304나 연장으로 되어 있다. 국

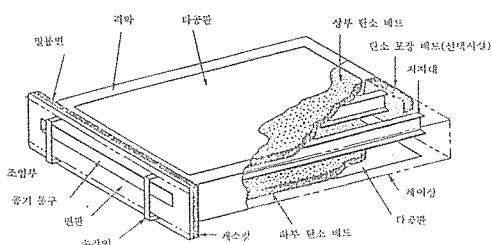
내에서 통용되는 규격은 610mm(H) × 610mm(W) × 292mm(D)로써 정격풍량이 1000CFM이다.



〈그림 1〉 Type I CELL

### (2) Type II CELL

흡착 CELL은 2인치 베드로 구성되어 있고, 내부 공간을 갖고 있으며, 삼면이 타공되지 않은 케이스로 되어 있으며, 공기는 정면에서 들어가서 흡착 CELL의 타공판으로 되어 있는 윗 부분과 아래 부분으로 공기가 빠져나가게 되도록 되어 있다.



〈그림 2〉 Type II CELL

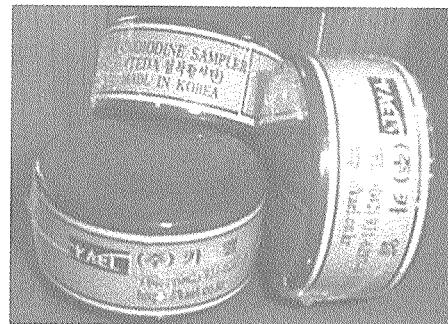
### (3) 충전 Type

흡착제를 4인치, 6인치 형태로 충전탑에 충전한다.

#### 나. 요오드 샘플러

원자력시설내 외부에서 방사성 요오드의

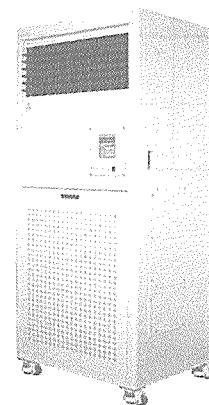
누수 여부 및 오염도를 측정하기 위한 것으로서 요오드 샘플러 내부에 요오드를 제거할 수 있는 활성탄이 충전되어 있다. 방사성 요오드 투과 효율은 99.95% 이상을 요구하고 있다.



〈그림 3〉 요오드 샘플러

#### 다. RI용 공기청정기

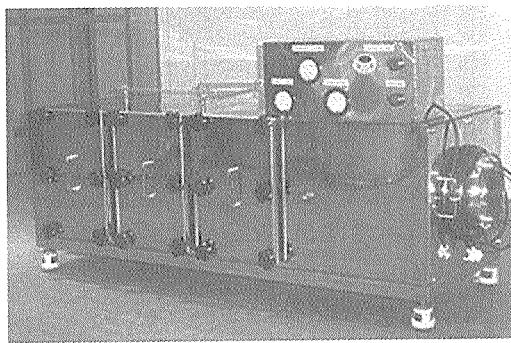
원자력시설, 연구소, 병원, 실험실 등에서 발생하는 방사성 가스 및 분진을 제거함으로써 작업자를 방사성물질로부터 보호하는 공기청정기이다. 공기청정기의 구성은 방사성 분진을 제거할 수 있는 Pre 필터, HEPA 필터와 방사성 요오드를 제거할 수 있는 첨착활성탄 필터로 구성되어 있다.



〈그림 4〉 RI 용 공기청정기

## 라. RI용 Filter Unit System

방사성동위원소 사용시설에서 발생된 각종 방사성폐기물을 처리하기 위한 System으로서 HEPA 필터와 Charcoal Filter로 구성되어 있다. RI Filter Unit System은 ANSI 509, 510에 준하여 제작되어 있으며, DOP 시험과 R-11시험을 수행하여야 한다.



〈그림 5〉 RI Filter Unit System

## 4. 검사방법 및 기준

새로운 활성탄이나 방사성 요오드 처리에 사용중인 활성탄의 시료 일부를 채취하여 정상 운전 조건보다 더 엄격한 조건하에서 제거효율을 측정하는 것으로 미국의 경우는 ASTM D 3803에 의해 실험실적 검사방법이 수행되고 있으며, 우리나라의 경우도 ASTM D 3803을 도입하여 적용하고 있다.

## 5. 향후 개발 방향

방사성물질은 기체 또는 고체 방사성물질 등이 다양하게 발생하며, 또한 대기 중에는 여러 가지 복합적인 유해가스 및 악취가스들도 존재하고 있다.

방사성 요오드 외에도 복합적으로 제거할 수 있는 흡착제를 개발하는데 중점을 두고 지속적으로 연구를 수행하고 있으며, 또한 이를 응용한 제품개발을 수행하고 있다. **KRIA**

〈표 1〉 Laboratory Tests for Activated Carbon

Activated Carbon Total Bed Depth	Maximum Assigned Credit for Activated Carbon Decontamination Efficiencies		Methyl Iodide Penetration Acceptance Criterion for Representative Sample
2 inch	Elemental iodine Organic iodide	95% 95%	Penetration $\leq$ 2.5% when tested in accordance with ASTM D-3803-1989
4 inch or greater	Elemental iodine Organic iodide	99% 99%	Penetration $\leq$ 0.5% when tested in accordance with ASTM D-3803-1989