

## Ion Adsorption Characteristics of IRN-150 Mixed Resin and Removal Behavior of $^{14}\text{C}$ Radionuclide from Spent Resin by Stripping Solutions

### IRN-150 혼상수지의 이온 흡착특성 및 폐수지로부터 탈착용액을 이용한 $^{14}\text{C}$ 핵종의 제거 특성

Ho-Yeon Yang, Jang-Sik Won, Young-Ku Choi,

Geun-IL Park\*, In-Tae Kim\*, Kwang-Wook Kim\*, Kee Chan Song\* and Hwan Seo Park\*

Nuclear Engineering & Technology Institute, 25-1 Jang-dong, Yuseong-gu, Daejeon

\*Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Dukjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon

[hvyang@khnp.co.kr](mailto:hvyang@khnp.co.kr)

양호연, 원장식, 최영구, 박근일\*, 김인태\*, 김광욱\*, 송기찬\*, 박환서\*

한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전시 유성구 장동 25-1

\*한국원자력연구소, 대전시 유성구 덕진동 150

(Received September 19, 2006 / Approved November 01, 2006)

#### Abstract

Spent ion-exchanged resin generated from various purification systems in CANDU reactor was contaminated with high activity of  $^{14}\text{C}$  radionuclide. This paper describes the results of fundamental study to develop the applicable technology for the treatment of this spent resin. Based on the adsorption capacity of inactive  $\text{HCO}_3^-$  ion and other anions on IRN-150 mixed resin, the removal characteristics of  $\text{HCO}_3^-$  ion adsorbed on to IRN-150 by various stripping solutions were evaluated. Maximum adsorption amount of the  $\text{HCO}_3^-$  ion onto IRN-150 raw resin was about 11 mg-C/g-resin which agrees with the theoretical adsorption amount of this resin. Adsorption affinity of various anions such as Cs, Co, Na,  $\text{NH}_4$  was analyzed in single and multi-component systems. From the results of removal characteristics of the  $\text{HCO}_3^-$  ion adsorbed on IRN-150 by various stripping solutions,  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  stripping solution is more effective than  $\text{NaNO}_3$ ,  $\text{Na}_3\text{PO}_4$  solutions for the complete removal of  $^{14}\text{C}$  radionuclide from the IRN-150 spent resin.

**Key Words** : CANDU reactor, Spent resin,  $^{14}\text{C}$  radionuclide, Anion, Adsorption, Stripping solution

#### 요약

중수로 원전내 여러 계통으로부터 발생된 폐수지내에는  $^{14}\text{C}$  핵종이 다량 함유되어 있으며,

Class A 및 C 폐기물로 분류되는 폐수지의 적정 처리 기술 개발을 위한 기초연구를 수행하였다. IRN-150 혼상 이온교환수지를 이용하여 비방사성  $\text{HCO}_3^-$  이온과 양이온의 흡착 특성 및 탈착용액을 이용한  $\text{HCO}_3^-$  이온의 제거 특성을 고찰하였다. IRN-150 수지의  $\text{HCO}_3^-$  이온의 흡착능은 이온값에 근접한 11 mg-C/g-IRN-150을 나타내었고,  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Co}_2^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$  양이온의 흡착 친화도를 단일성분 및 복합성분 시스템을 이용하여 분석하였다. 여러 가지 탈착용액을 이용한 폐수지로부터  $\text{HCO}_3^-$  이온의 제거 특성을 평가한 결과,  $^{14}\text{C}$  핵종을 전량 효과적으로 제거하기 위해서는  $\text{NaNO}_3$ ,  $\text{Na}_3\text{PO}_4$  보다도  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  용액이 유리한 것으로 나타났다.

**중심단어:** 중수로, 폐수지,  $^{14}\text{C}$  핵종, 양이온, 흡착, 탈착용액

## I. 서론

국내에서는 현재 16기의 가압 경수로(PWR)와 4기의 가압중수로(PHWR) 원자력발전소가 가동중에 있으며, 원자력 발전소의 운영에 따라 다양한 종류의 방사성 폐기물이 필연적으로 발생되고 있다. 원자력 발전소의 안전 운영에 영향을 미치는 주요 인자로는 원전 운영 중 발생된 폐기물의 안전관리 및 처분장 수용 부담을 줄일 수 있는 폐기물 부피감용 효과 등을 들 수 있다. 이온교환수지는 원자력발전소의 여러 액체폐기물 처리계통에서 다양한 핵종을 제거하기 위하여 사용되고 있는 데[1], 특히 가압중수로(PHWR) 원자력발전소에서는 중수의 사용에 따라 감속재 및 냉각재 계통, 환형기계 계통, 핵연료 손상 등에 의해  $^{14}\text{C}$  핵종이 발생되고 있으며, 대부분 감속재 계통의 중수내 함유된  $^{17}\text{O}$ 에 의한  $^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$  반응에 의해 생성되고, 총 발생량의 93%이상이 주로 감속재 계통에서 생성되므로 이를 제거하기 위하여 IRN-150(양이온, 음이온 이온교환수지를 동일 당량 비로 혼합한 수지) 이온교환수지를 이용하고 있다[2]. 그리고 이온교환 탑에서  $^{14}\text{C}$  핵종의 제거시 용액의 pH 특성으로 인하여 주로  $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$  이온형태로 이온교환 되는 것으로 알려져 있다[6,7]. 국내 과학기술부 고시 2005-18과 미국 10 CFR61에 의하면  $^{14}\text{C}$  핵종을 함유한 폐기물에 대한 농도 제한치를 설정하고 폐수지의 경우 Class A 및 C 폐기물로 분류하고 있다[8].

가압중수로에서  $^{14}\text{C}$  핵종을 제거하기 위하여 감속재 계통에서 사용된 이온교환수지의 총 발생량은 월

성 1호기의 경우 2003년 기준으로 약 22톤이다. 실제로 월성 1, 2호기 원전은 각각 감속재 및 냉각재 계통, 액체 폐기물 처리 계통 등 9개(월성 1호기)와 7개(월성 2호기) 계통에서 이온교환 기술을 이용해 계통을 정화하고 있으며, 발생된 폐수지는 방사능 준위나 양, 음이온 교환수지, 발생 계통별로 구분이 되지 않고 발생된 상태 그대로 혼합, 저장되고 있다[4]. 이상과 같이 혼합, 저장되어 있는 폐수지는 전처리(Conditioning) 과정을 거친 후 드럼에 저장하여 처분 시설로 보내게 된다. 영구 처분을 위해서 폐수지를 포함한 포장물 내의 방사성 핵종 및 함유량은 폐기물 인수 절차에 따라 관련 기관에서 승인된 방법에 의해 핵종 분석 및 방사능량이 결정되어야 하는데, 현재 국내의 경우 처분방식이(처분부지는 경주로 결정) 결정되지 않았기 때문에 각 핵종별 방사능 제한치가 없는 실정이다.

$^{14}\text{C}$  핵종은  $\beta$ 선 방출 동위원소로서 반감기가 5,730년으로 매우 길기 때문에  $^{14}\text{C}$  핵종이 함유된 폐수지는 처분장으로서의 인수기준이 까다롭다. 인공방벽 천층 처분장을 운영하고 있는 미국의 경우를 예로 들면,  $^{14}\text{C}$  핵종에 대해 US 10 CFR 61.8에 의하면 8 Ci/m<sup>3</sup>를 최대 방사능 농도 제한치로 두고 있으며, 우리나라는 미국보다 더 엄격한 6 Ci/m<sup>3</sup>를 최대 방사능 농도 제한치로 하고 있다[8]. 폐수지내  $^{14}\text{C}$  핵종의 농도가 처분제한치보다 대부분 높고, 현재 국내의 경우 각 계통에서 발생하는 폐수지와 활성화 등을 발전소 내 대형 저장탱크에서 저장하고 있기 때문에, 향후 10년 이내에 포화될 것으로 예상되므로 폐수지의 최

중 처리수단 확보가 시급하다.

따라서 원자력발전소내 폐수지 저장탱크의 용량 확보와 폐기물 부피감용을 위하여  $^{14}\text{C}$  핵종이 함유된 폐수지의 적절한 처리기술이 요구되고 있다[9]. 이를 위하여 폐수지내에 흡착(이온교환)되어 있는  $^{14}\text{C}$  핵종을 선택적으로 분리하여 폐수지 부피를 감용하기 위하여 개발되고 있는 기술로는 주로 산용액 이용(Acid stripping)[3, 10], 습식산화(Wet oxidation) 공정[11], 소각처리(Incineration) 공정[12], 용융염 산화(Molten salt oxidation) 공정[13], 유리화(Vitrification) 공정[14] 등이 있다. 이상의 기술들은 공정 특성으로 인한 이차 폐기물의 발생량 및 부피감용을 목표로 효과적인 처리 관점에서 보면 각각의 기술들은 상호 장·단점을 가지고 있기 때문에 여러 나라에서 연구 개발을 수행 중에 있다.  $^{14}\text{C}$  핵종을 함유하고 있는 중수로 원전 발생 폐수지 처리기술 개발을 위하여 고려하여야 할 우선사항은 방사성폐기물 처리기술에 공통적으로 적용되는 기준인 이차 폐기물 발생 부피를 최소화하는 것이다. 이를 위하여  $^{14}\text{C}$  핵종의 방사능이  $6 \text{ Ci/m}^3$ (국내기준)이상이 될 것으로 예상되는 폐수지로부터 C-14 핵종을 선택적으로 분리함으로써  $^{14}\text{C}$  핵종이 제거된 잔류 폐수지를 중저준위 폐기물로 전환시켜 쉽게 처리할 수 있으며, 이차폐기물 발생량이 최소가 되도록 분리된 C-14 핵종은 농축하여 감용 효과를 극대화하여야 한다[8,9].

본 논문에서는  $^{14}\text{C}$  핵종이 함유된 폐수지의 적절한 처리방안을 제시하기 위한 기초 연구로서, 월성 원자력발전소에서 사용중인 IRN-150 이온교환수지를 이용하여 탈착의 가역성 분석을 목적으로  $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$  이온의 흡착특성을 우선적으로 분석하였다. 아울러 IRN-150 수지는 양이온교환수지(IRN-77)과 음이온교환수지(IRN-78)이 동일 당량비 (1:1)로 혼합되어 있으므로  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Co}^{2+}$  등 금속이온의 흡착평형 및 탈착용액 내 양이온성분인  $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ 이온에 대한 흡착특성도 동시에 평가하였는데, 이는 음이온교환수지로부터  $^{14}\text{C}$  핵종의 탈착시  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Co}^{2+}$  이온의 탈착여부를 평가하기 위한 기초자료로 활용된다. 아울러  $\text{HCO}_3^-$  이온이 흡착되어 있는 IRN-150 혼합수지로부터  $\text{HCO}_3^-$  이온의 탈착용액으로 분리특성을 용액의 농도 변화에

따라 평가하였으며, 탈착용액으로는  $\text{NaNO}_3$ ,  $\text{Na}_3\text{PO}_4$ ,  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 을 선정하였고 비교 평가를 위하여  $\text{NaOH}$  용액을 사용하였다.

## II. 실험

### 가. 실험 재료

월성 원자력발전소에서 실제 이용되고 있는 이온교환수지인 IRN-150 혼합수지를 사용하였고, 모든 실험은 비방사성 이온을 이용하여 수행하였다. Rohm & Hass사에서 제조한 Amberlite IRN-150 수지는 공업용 등급으로 젤 형태의 균일 크기 폴리스티렌 양이온교환수지(IRN-77)과 음이온교환수지(IRN-78)이 동일 당량비 (1:1)로 혼합되어 있으며, IRN-77과 78의 물리화학적 특성은 Table 1 에 나타낸 바와 같다[15].

IRN-150 수지의 물리·화학적 특성을 보면, 균일 크기의 구형 입자로서 겉보기 비중(Bulk density)는  $690 \text{ g/L}$ 이고, 수지의 모체는 가교도 약 8%인 스티렌계 합성수지이며, 양이온교환기는 황산기(Sulfonic acid,  $-\text{SO}_3\text{H}$ ), 음이온교환수지 교환기는 4급 암모늄(Trimethylammonium,  $-\text{CH}_2\text{N}(\text{CH}_3)_3\text{OH}$ )이다.

### 나. 실험 방법

#### ① 흡착평형 실험

이온교환능 즉 흡착 성능은 이온교환 수지의 총 교환 능력(흡착량)을 나타내며 이는 작용기의 수 또는 농도에 의존한다[1,16]. 수지의 성능 값은 주로 단위 g당 밀리 당량(meq/g)으로 표현하며 무게는 주어진 작용기형태( $\text{H}^+$ ,  $\text{OH}^-$ )에서 시료의 건조무게이다. 이온교환수지의 흡착평형 특성을 평가하기 위해서는 주로 회분식 실험을 수행하므로 이를 본 실험에서도 선택하였다.  $^{14}\text{C}$  핵종은 중수로 감속재 계통에서 94% 이상 생성되고, 음이온교환수지에 의해 약 95% 정도 제거된다. 감속재 계통 냉각수는 pH가 8.3정도이나 혼합이온교환수지 탑을 통과하면서 이온교환에 의한  $\text{H}^+$ 와  $\text{OH}^-$ 이온의 방출로 인하여 pH가 6 ~ 7정도를 유지하므로 음이온교환수지에 흡착된  $^{14}\text{C}$ 은  $\text{HCO}_3^-$ 이온으로 이온교환 된다.  $^{14}\text{C}$  핵종은 용액 내에서 pH

Table 1. Characteristics of Amberlite IRN 77 & IRN 78 ion-exchange resin.

	IRN 77	IRN 78
Ionic form	H <sup>+</sup>	OH <sup>-</sup>
Degree of Cross-linking		6% DVB*
True density(wet)		1.1 g/cm <sup>3</sup>
Bulk density (g/L)	690 (IRN-150)	
Void fraction		32.7 %
Particle size	0.3 - 1.18 mm <0.3 mm: max. 0.2% <1.18mm : max. 3.0%	0.3 - 1.18 mm
Effective size	0.5 mm	0.55 mm
Uniformity coefficient	1.8	1.35
Moisture content	55%	50%
pH range	0 - 14	0 - 14
Maximum operating temp.	120 °C	60 °C
Total exchange capacity	1.9 eq/ L 이상(H <sup>+</sup> )	1.2 eq/L 이상 (OH <sup>-</sup> )
Volume per unit gram	1.25 ml/g-dry	1.51 ml/g-dry

에 따라  $^{14}\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2^{14}\text{CO}_3$ ,  $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$ ,  $^{14}\text{CO}_3^{2-}$ 의 형태로 존재하는데, 지화학코드인 PHREEQE[17]를 이용한 수용액내 탄산이온의 pH 변화에 따른 화학종별 분포 특성을 Fig.1에 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이 C-14은 pH 5이하의 용액에서  $\text{H}_2^{14}\text{CO}_3^*$ (주로  $^{14}\text{CO}_2$ 기체로 휘발됨), pH 6~8의 용액에서  $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$  이온이 주종이고,  $\text{H}_2^{14}\text{CO}_3^*$ 는 소량 존재한다. pH 10 이상의 용액에서는  $^{14}\text{CO}_3^{2-}$ 가 주요 화학종이 된다.

따라서 이온교환탑의 운전 조건인 pH 5~6의 범위에서  $\text{HCO}_3^-$  이온형태로 주로 존재하므로  $\text{NaHCO}_3$  표준시약을 이용하여  $\text{HCO}_3^-$  이온의 농도변화에 따

른 IRN-150의 이온교환(흡착 시스템으로 가정) 평형 실험을 30°C의 일정 온도로 유지된 항온조에서 용액을 교반하면서 수행하였다. 사용된 수지 양과 용액 부피 비는 0.5 ~ 2 g/L로 하였으며, 70°C, 110°C로 건조한 IRN-150 수지를 사용하여 흡착평형 특성에 미치는 열화의 영향을 평가하였다. 아울러 수지내  $\text{HCO}_3^-$  이온의 탈착 후보 이온인  $\text{NO}_3^-$  이온( $\text{NaNO}_3$ )과  $\text{H}_2\text{PO}_4^-$ ( $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ ) 이온의 상호 경쟁 흡착특성을 평가하였다.

IRN-150수지에 의한 양이온 금속이온 흡착 특성 평가는 처리되는 액체 폐기물내에  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Co}^{2+}$  및  $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$  이온의 농도는 상대적으로 낮다는 점에서 평형 실험은 완전한 등온선을 얻기보다 실제 폐액내에 존재할 수 있는 저 농도 수준과 고농도수준에서의 이온 교환용량을 확인하기위해 IRN-150 혼상수지에 의한 상기 양이온들의 흡착실험을 수행하였다. 초기 각 양이온 농도는  $10^{-4} \sim 10^{-2}$  M로 하여 용액 100ml에 1g의 IRN수지를 넣은 후, 1주일간 30°C에서 교반하여 완전히 평형에 도달시켰다.

용액내 C 농도는 TOC(Total Organic Carbon) 분석기를 이용하여 구하였으며,  $\text{NO}_3^-$  이온과  $\text{H}_2\text{PO}_4^-$  이온농도는 IC(Ion Chromatography) 및 TN(Total Nitrogen)분석을 통하여 구하였고, 양이온 금속이온 농도는 ICP-Mass분석을 이용하여 측정하였다.

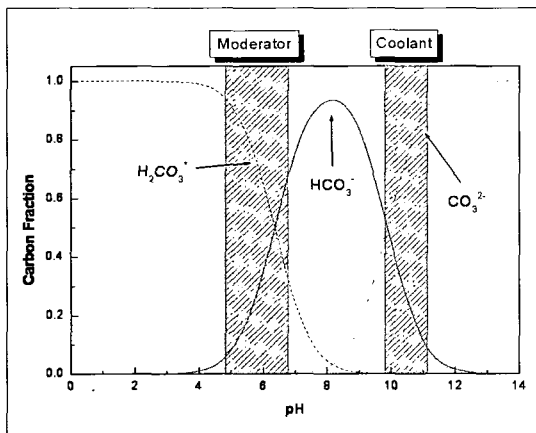


Fig.1. Distribution of carbon chemical species with solution pH [6.7] ( $\text{H}_2\text{CO}_3^* = [\text{CO}_2] + [\text{H}_2\text{CO}_3]$ ).

② 폐수지내 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 탈착특성 실험

흡착 실험과 동일하게 IRN-150 이온교환수지를 사용하였으며, HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온이 흡착된 IRN-150 이온교환수지로부터 NaOH, Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>(PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>), NaNO<sub>3</sub>(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>), NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>(H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub><sup>-</sup>) 용액을 이용한 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 탈착특성을 분석하였다. 단위 g 당 약 4 ~ 12 mg-C가 흡착된 IRN-150수지 0.2 g를 사용하였으며, 각 용액의 농도 변화는 0.005 ~ 0.1 N이었으며 용액 부피변화에 따른 영향도 동시에 평가하였다. 탈착 실험 후 수지와 용액을 분리하고 용액내 C의 농도는 TOC를 이용하여 측정하였으며, HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 탈착율은 탈착전 수지내 C 총량과 탈착후 용액내 C의 총량을 비교하여 구하였다.

탈착율 =

$$\frac{\text{탈착후 용액내 C 총량}(C \text{ 농도} \times \text{용액부피})}{\text{탈착전 수지내 C 총량}[\text{흡착량}(mg-C/g-수지) \times \text{수지양}(g)]} \quad (1)$$

III. 결과 및 고찰

가. IRN-150의 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온 흡착평형 특성

먼저 IRN-150 수지에 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 흡착평형 특성을 분석하기 위하여 시간에 따른 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 흡착량 변화를 구하였다. 초기 농도 60ppm-C의 0.005N NaHCO<sub>3</sub> 용액을 사용하여 용액부피(V)/수지양(m)비를 2 L/30g, 2 L/40g으로 하고 항온조에서 흡착시간에 따른 용액내 C 농도를 측정하였으며, 이를

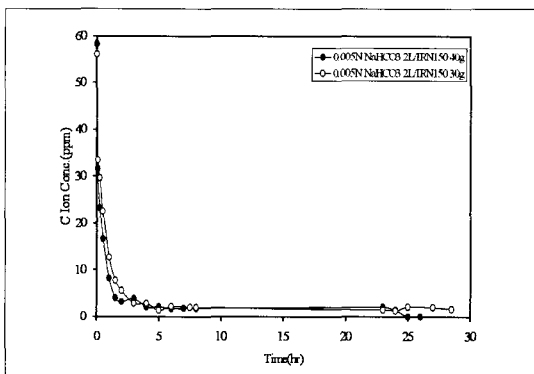


Fig.2. Adsorption behavior of HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> ion on IRN-150 resin with a adsorption time (Initial C concentration : 60ppm C).로 해체비용 산정 절차

Fig. 2에 도식하였다. 그림에 나타난 바와 같이 흡착 평형은 5시간이면 충분한 것으로 나타났으나 본 실험에서는 24시간동안 흡착평형 실험을 수행하였다.

HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온이 흡착된 IRN-150 이온교환 수지로부터 탈착특성 평가를 위한 기초 자료 생산을 위하여 우선 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 등온흡착 평형실험을 수행하였으며, 향후 단순 열적처리에 의한 탈착특성 평가를 목적으로 IRN-150의 건조온도에 따른 등온 흡착량을 구하였고 이를 Fig. 2에 나타내었다. 아울러 탈착이온 후보로 고려되는 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온, H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub><sup>-</sup> 이온의 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온과의 경쟁흡착 특성을 분석하기 위하여 우선 각 이온의 등온 흡착평형 실험을 수행하였으며 이를 Fig.3에 도식하였다. IRN-150 이온교환수지의 이론 최대 흡착량은 약 12mg-C/g-IRN150수지 (61mg-HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>/g- IRN150수지)로서[15] Fig.3의 실험값인 약 11 mg-C/g -IRN150수지와 비교하면 약 10% 차이를 보였다. 아울러 열처리를 할 경우 함유된 수분의 탈착으로 사용량이 증가하므로 흡착량은 증가하였지만 무게 증가에 따른 비례관계를 나타내지 않았는데 이는 열적 열화현상에 기인한 것으로 판단되며, 이러한 결과를 바탕으로 탈착용액과 열적처리를 병행할 경우 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 탈착이 가능할 것으로 예상된다.

Fig. 4는 IRN-150 수지에 의한 폐수지 처리과정에서 존재할 수 있는 여러 종류의 이온들에 대한 단일 성분 흡착평형 실험결과로서, IRN-150의 각 이온별 흡착 친화도(affinity)는 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> >> HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> > H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub><sup>-</sup>로 나

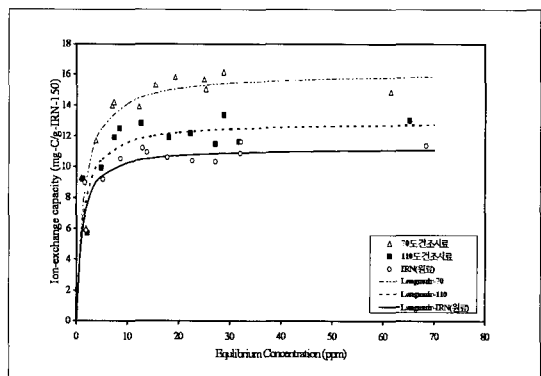
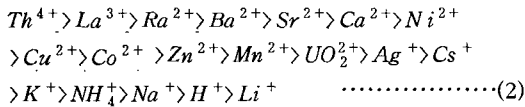


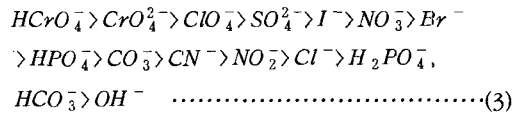
Fig.3. Adsorption isotherms of HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> ion on raw IRN-150 resin and thermal-treated resins at 30°C.

타났으며, 이는 이온별 특성에 따른 일반적인 흡착 친화도와 거의 일치하였다[16, 18]. 폐액중의 양이온(Cation)과 음이온(Anion)은 이온교환수지로 제거할 수 있는데, 양이온은 수소이온이나 나트륨이온, 음이온은 수산기 이온과 교환한다. 일반적으로 이온교환 반응의 인자로는 제거 대상 핵종의 농도뿐만 아니라 교환기의 특성, 교환되는 이온의 종류, 온도와 교환기의 입자크기와 같은 인자들이 중요하다. 이온교환 정도는 (1) 교환되는 이온의 크기 및 원자가(전하), (2) 물 또는 용액중의 이온농도, (3) 이온교환물질의 성질(물리적, 화학적 성질)등과 같은 여러 인자에 의해 좌우된다[4-1, 4-2]. 이온교환 친화도(affinity)는 교환되는 이온의 전하가 크고 원자번호가 클수록(수화된 이온반경이 작을수록) 증가하게 된다[16,18]. 예를 들면 양이온의 이온교환수지에 대한 친화도는 아래와 같다.



따라서 라듐(Ra)가 가장 이온교환이 쉬우며, 리튬(Li)이 가장 교환되기 어려운 양이온이다. 본 공정에서 관심 대상인 양이온은 Cs<sup>+</sup>, Co<sup>2+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>로서 Co<sup>2+</sup>의 이온교환능이 가장 크며 Na가 이온교환능이 가장 약하다.

음이온의 이온교환 친화도는 아래와 같이 알려져 있다[16,18].



이상의 양이온 및 음이온들에 대한 선택성은 <sup>14</sup>C 핵종(주로 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 형태)이 함유된 폐수지로부터 <sup>14</sup>C 핵종이온을 탈착시키기 위한 용액을 선정하는 데 있어서 기본 자료로 활용된다.

아울러 각 이온별 경쟁 흡착에 의한 친화도를 평가하기 위하여 탈착용액의 음이온 성분으로서 고려되는 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> + HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 및 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> + H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub><sup>-</sup> 이성분 경쟁 흡착평형 실험을 수행하였으며, 실험결과는 Fig. 5와 6에 나타난 바와 같다. 이성분 경쟁 흡착의 경우에도 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온이 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온 및 H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub><sup>-</sup> 이온보다 흡착 친화도보다 더 큰 것으로 나타났다.

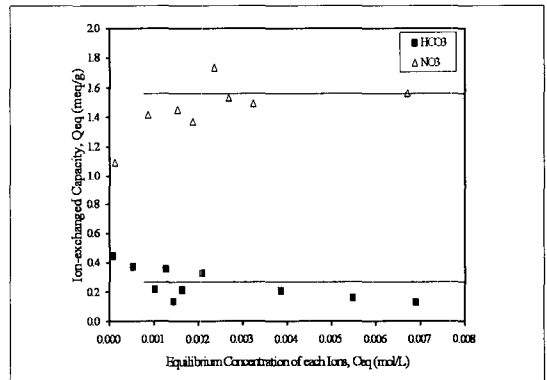


Fig.5. Adsorption isotherms of each ion in NO<sub>3</sub>-H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> binary system on IRN-150 resin at 30°C.

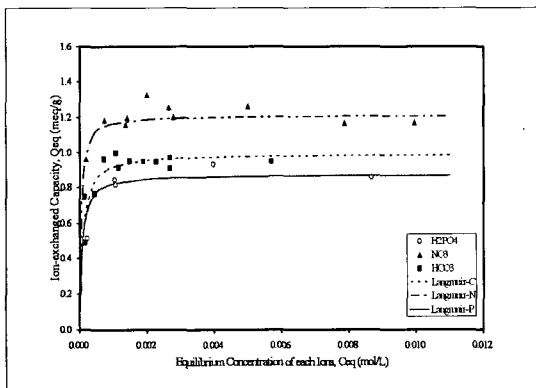


Fig.4. Adsorption isotherms of various ions on IRN-150 resin at 30°C.

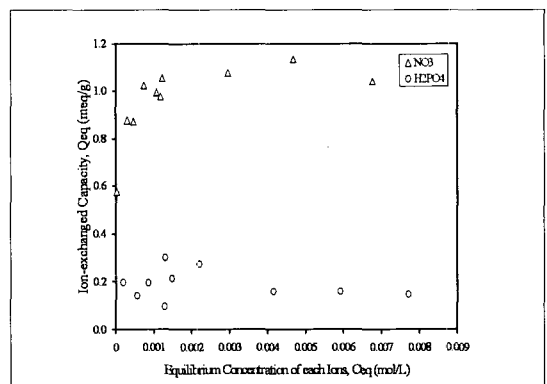


Fig.6. Adsorption isotherms of each ion in NO<sub>3</sub>-H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> binary system on IRN-150 resin at 30°C.

**나. IRN-150의 금속 양이온의 흡착 특성**

금속이온의 탈착 가능성을 평가하기 위해서는 실제 폐수지의 상태를 고려할 필요가 있다. 원자력발전소에서 사용된 폐수지는 처리되어진 액상의 금속이온이나  $\text{HCO}_3^-$  이온의 용액농도에 의존하여 이온교환되지 않은 일정양의 활성점(active site)들이 존재하며, 이러한 활성점들은 탈착용액내에 존재하는 이온들의 활성점으로 작용한다. 만일 존재하는  $\text{NH}_4^+$ 의 절대량이 주어진 폐수지의 활성점의 양에 비해 낮을 경우 금속이온의 탈착 가능성은 낮아지며, 그 양이 높거나 양이온의 활성점이 동일한 경우 각 이온들의 선택성에 의해 탈착이 진행될 것이다. 따라서 IRN-150 혼상 폐수지로부터  $^{14}\text{C}$  핵종의 선택적 탈착 가능성을 평가하기 위하여, 고려 대상 양이온들중  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Na}^+$  및  $\text{NH}_4^+$  이온들에 대한 흡착 특성 및 이성분계에서 이온교환수지의 선택성을 분석하였다.

30°C에서 흡착평형 후 용액의 pH와 양이온의 농도를 측정하여 흡착 등온곡선과 pH의 변화를 Fig. 7 및 8에 나타내었다. 이온교환 흡착용량은  $\text{Co}^{2+}$  >  $\text{Cs}^+$  >  $\text{Na}^+$  >  $\text{NH}_4^+$ 의 순으로 감소하였으며, 주어진 농도구간에서  $\text{Cs}^+$  및  $\text{Co}^{2+}$ 를 제외한  $\text{Na}^+$ 와  $\text{NH}_4^+$ 는 고농도수준에서도 이온교환수지에 흡착할 수 있는 포화용량에 도달하지 않았다. 즉  $\text{Co}^{2+}$ 와  $\text{Cs}^+$ 가 타 양이온들에 비해 상대적으로 이온교환수지에 대해 높은 친화성을 가진다고 말할 수 있다. 그러나 이러한 단일성분의 등온 흡착실험 결과만으로는 탈착용액을 이용하여  $\text{HCO}_3^-$ 을 탈착시  $\text{Cs}^+$ 의 탈착이 낮을 것이라

고 판단할 수는 없을 것이다. 이온교환공정은 pH에 큰 영향을 받으며, 이러한 pH는 IRN-150수지가 혼상수지라는 점에서 음이온교환에 의해 발생하는  $\text{OH}^-$ 의 영향을 받기 때문에, 단일성분의 이온교환특성으로 탈착특성을 평가하기 어렵다. 특히, 농도에 따라 양이온과 음이온의 교환특성이 상이하기 때문에 이온교환에 의해 발생하는 수소이온이나 수산화이온의 양도 차이가 나므로 pH 변화는 농도에 따라 다른 거동을 보일 수 있다. Fig. 8의 단일성분 이온교환에 따른 pH의 변화를 보면, 저 농도에서는 pH의 변화가 초기 pH 6.85수준에서 큰 차이를 나타내지 않으나, 초기농도가 0.007 mol/L 이상에서는 최종 pH는 3~4 수준으로 변화하였다. 특히, pH의 감소는  $\text{Co}^{2+}$  >  $\text{NH}_4^+$  >  $\text{Na}^+$  >  $\text{Cs}^+$ 의 순으로 나타났다. 초기 용액내에 존재하는 동일한 수준의 음이온농도를 고려할 경우, pH의 감소는 음이온보다 양이온의 이온교환이 보다 많이 이루어지고 있음을 말해준다. 특히 고농도수준에서  $\text{Co}^{2+}$ 는 가장 높은 pH 감소를 보이며, 이는 최종 pH 3정도의 영역에서도  $\text{Co}^{2+}$ 의 이온교환이 효과적으로 이루어질 수 있음을 말해준다.  $\text{Cs}^+$ 의 경우, 가장 낮은 pH 감소 특성을 보이며, 최종 pH 4.5수준에서 포화되어 안정한 상태로 유지할 수 있음을 보여준다. 그러나  $\text{Na}^+$  및  $\text{NH}_4^+$ 는 최종 pH가 3~4수준으로 나타났으며 포화 흡착용량에 도달되지 않았는데, 이온교환 흡착용량은 평형농도 증가에 따라 서서히 증가된다는 점에서  $\text{H}^+$ 의 이온과 상대적으로 경쟁적 관계가 존재하고 있음을 알 수 있었다.

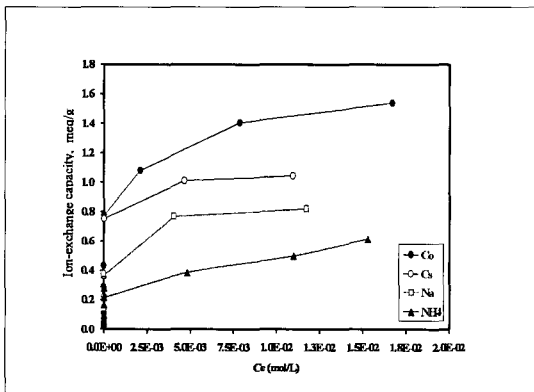


Fig.7. Adsorption isotherms of  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$  ions on IRN-150 resin at 30°C.

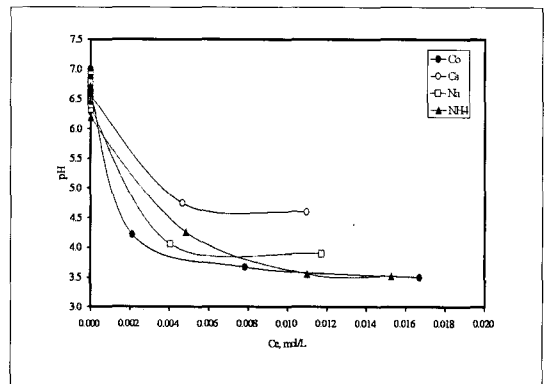


Fig.8. Solution pH variation with equilibrium concentration of each ion after adsorption equilibrium of each anion on IRN-150 resin.

Fig. 9는 Cs<sup>+</sup>-Na<sup>+</sup>, Cs<sup>+</sup>-NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 및 Cs<sup>+</sup>-Co<sup>2+</sup>로 이루어진 이성분계에서 각 이온의 초기 농도 변화에 따른 Cs<sup>+</sup>의 선택도를 나타낸 것으로, 각 성분 계에서 Cs<sup>+</sup>의 선택도는 초기 이성분의 농도비를 보정하여 다음의 식으로 계산하였다.

$$\alpha = \frac{\text{(Amount of Cs in Ion-exchanger, mol)}}{\text{(Amount of M in Ion-exchanger, mol)}} \quad (4)$$

Fig. 9에서 보는 것처럼, 각 양이온의 초기농도가 약 0.004 mol/L이하에서는 선택도가 1에 근접하여 나타나며, 그 이상의 농도에서는 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>와 Co<sup>2+</sup>가 존재하는 경우, 각각의 이온에 대해 선택도는 1이하로 급격히 낮아지며, Na<sup>+</sup>가 존재한 경우는 반대로 서서히 상승하는 것으로 나타났다. 여기서 선택도 값 1의 의미는 다른 금속 양이온에 의한 Cs<sup>+</sup>의 탈착 가능성이 낮음을 나타내며, 그림에서처럼 탈착용액내 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>의 양이 이온교환수지의 용량보다 높은 상태, 즉 초기 농도가 약 0.004 mol/L이상에서는 선택도 값이 1이하로 급격히 감소하였는바 이는 다른 금속 양이온에 의한 Cs<sup>+</sup>의 탈착 가능성이 높다는 것을 확인할 수 있었다. 단일성분의 이온교환특성에서처럼, 저 농도 영역에서도 Co<sup>2+</sup> 및 Cs<sup>+</sup>는 이온교환수지의 포화용량에 근접한다는 점에서 폐액내의 양이온의 농도가 극단적으로 낮은 경우를 제외하고 폐수지내에 양이온의 빈 활성점이 존재할 가능성은 상대적으로 낮을 것으로 보인다. 따라서 음이온 교환수지내 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>의 제거를 위해 사용되는 탈착용액내 존재하는 양이온 성분

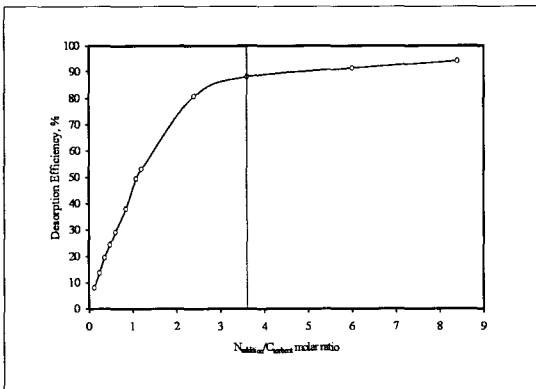


Fig.9. Selectivity of Cs on IRN-150 Solution in Cs<sup>+</sup>-Na<sup>+</sup>, Cs<sup>+</sup>-Co<sup>2+</sup>, Cs<sup>+</sup>-NH<sub>4</sub><sup>+</sup> binary systems.

에 의하여 Cs<sup>+</sup>의 탈착 가능성은 항상 존재하며, 특히 절대량과 동시에 고려되어야 할 것은 평형 pH이다.

Fig. 10의 Cs<sup>+</sup>-Co<sup>2+</sup>의 이성분계의 경우, 최종 pH는 4정도까지 감소되었으며 Fig. 9에 나타낸 바와 같이 고농도 영역에서 Cs<sup>+</sup>의 선택도가 낮게 나타났는데, 이는 단일성분의 이온교환특성에서처럼 Co<sup>2+</sup>의 친화력이 Cs<sup>+</sup> 보다 상대적으로 높기 때문이다. Cs<sup>+</sup>-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>의 경우는 단일성분의 이온교환특성만을 고려할 경우, Cs<sup>+</sup>의 선택성은 상대적으로 높아야 한다. 그러나 Cs<sup>+</sup>-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>의 이성분계에서 Cs<sup>+</sup>의 선택도는 1이하로 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>가 보다 높은 선택성을 보인다. 단일성분의 경우, 고농도에서 Cs<sup>+</sup>의 평형 pH는 4.7수준이며, Cs<sup>+</sup>-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>의 이성분계에서 최종 pH는 3.5수준으로 상대적으로 낮게 존재한다. 이러한 결과로부터, pH의 관점에서 탈착용액을 이용한 IRN-150 폐수지내 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온을 제거하고 동시에 Cs<sup>+</sup>의 탈착율을 최소화하기 위해서는 탈착용액의 pH를 4.5이상으로 유지시키는 것이 바람직한 것으로 판단된다. 이상의 결과를 종합하면, IRN-150 폐수지내 양이온 금속의 탈착율을 최소화하기 위해서는 폐수지내에 존재하는 금속량과 탈착에 사용되는 양이온의 합을 포화 흡착용량에 근접한 정도로 조절하여야 하며, pH는 4.5이상으로 유지하여야 함을 알 수 있었다.

**다. IRN-150의 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온 탈착 특성**

폐수지 처리를 위한 여러 가지 기술중 수지로부터 핵종을 선택적으로 분리하여 농축하고 핵종이 제

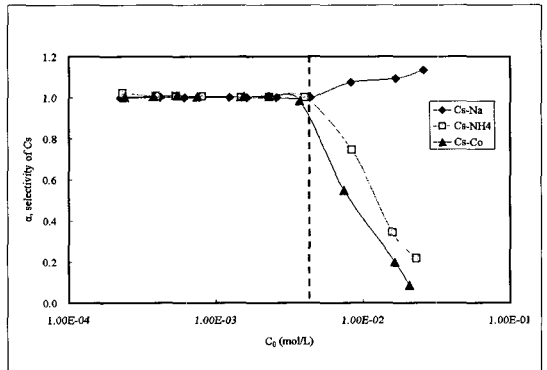


Fig.10. Solution pH variation with equilibrium concentration of Cs after adsorption equilibrium on IRN-150 resin in Cs<sup>+</sup>-Na<sup>+</sup>, Cs<sup>+</sup>-Co<sup>2+</sup>, Cs<sup>+</sup>-NH<sub>4</sub><sup>+</sup> binary systems.



거된 잔류 폐수지를 쉽게 처리할 수 있는 기술개발은 폐기물 부피 최소화 관점에서 매우 중요하다. 특히 <sup>14</sup>C 핵종이 다량 함유되어 폐수지의 경우, 폐수지에 H<sup>14</sup>CO<sub>3</sub><sup>-</sup> 형태로 흡착되어 있는 <sup>14</sup>C 핵종을 H<sup>14</sup>CO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온보다 이온교환 선택도가 더 큰 탈착용액(NaNO<sub>3</sub>, Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>, NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>)을 이용하여 폐수지로부터 선택적으로 분리하면 잔류 폐수지는 저준위 폐기물로 분류할 수 있으므로 추가 공정 선택이 쉬워진다[3-1]. 아울러 수지로부터 선택적으로 분리된 <sup>14</sup>C 핵종은 이차폐기물 발생량을 최소로 하고 안전한 고정화 생성물에 농축시킬 수 있는 기술이 개발되어야 한다. 앞서 언급한 이온교환수지에 대한 양이온과 음이온의 친화도를 기준으로 탈착용액내 양이온 후보로는 Na<sup>+</sup> 및 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 이온, 음이온으로는 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub><sup>-</sup> 등이 좋으므로 탈착용액으로 알칼리용액으로 NaNO<sub>3</sub>, Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>, NaOH, 약산성용액으로 NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>, 산성용액으로 HNO<sub>3</sub>, HCl을 선정하였으며, HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온만이 흡착된 IRN-150 폐수지로부터 탈착용액 농도 변화에 따른 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 탈착 특성을 분석하였다.

① NaOH, Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 용액에 의한 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온 탈착특성

음이온의 이온교환수지에 대한 선택도는 문헌에 의하면 PO<sub>4</sub><sup>3-</sup> > SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> > NO<sub>3</sub><sup>-</sup> > F<sup>-</sup> > HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이므로 Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 용액이 가장 효과적임을 의미하고 있고, 원자력환경기술원에서 수행한 연구에 의하면 0.005N 농도 Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 용액을 이용하여 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 탈착 가능성을 확인한 바 있다. 따라서 탈착용액으로 사용된 용액에 의한 이차폐기물 감소를 목적으로 동일 당량의 PO<sub>4</sub><sup>3-</sup> 이온이 함유되도록 농도 변화(즉 용액부피 감소)에 따른 영향을 평가하였다.

HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온이 흡착된 IRN-150 이온교환 수지로부터 NaOH, Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 용액의 농도 변화에 따른 C(HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>) 이온의 탈착특성을 분석하였다. 용액 농도는 0.001N ~ 0.1 N 범위로 하였으며, 탈착전 수지내 C 함량은 4 mg-C/g-수지로서 약 0.12g를 사용하였고 탈착용액 부피는 50 ml로 하였는데, Table 2는 두 가지 용액의 농도 변화에 따른 탈착 전후 용액내 C 농도의 변화를 정리한 결과이다. 또한 용액 발생량 최소화를 목적으

로 용액농도 및 부피변화에 따른 탈착 전후 용액내 C 농도의 변화를 Table 3에 정리하였다.

탈착전 수지에 함유된 C 양은 약 0.48 (Table 2) ~ 0.8 mg-C(Table 3)이며, 수지로부터 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온이 모두 탈착용액으로 분리될 경우 용액내 C 농도는 16 ppm(Table 2), 16 ~ 80 ppm(Table 3)이다. 본 실험은 공기 분위기에서 수행하였으며 통상적으로 실험실내 공기 중 CO<sub>2</sub> 농도는 약 50 ppm이고 탈착용액은 실내공기와 접촉이 가능하며 NaOH는 CO<sub>2</sub> 흡수능이 매우 우수하다. Table 2와 3에 나타난 바와 같이 탈착 초기 C 농도가 "0"이 아닌 높은 농도의 C 이온을 함유하고 있으며 NaOH 및 Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 농도가 증가함에 따라 탈착전 용액의 C 농도가 증가하였다. 탈착 후 C 농도의 변화를 초기 C 농도와 비교하여 보면 Table 2 실험의 경우 탈착후 농도와 초기 농도의 차이가 크지 않았으며, Table 3의 경우도 탈착 후 C 농도 계산 값보다 더 낮게 나타났다.

Table 2. Variation of C concentration in scrubbing solution with a change of concentration of NaOH, Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> solution

탈착용액	농도(N)	0.01	0.02	0.05	0.07	0.1
NaOH	시료무게(g)	0.122	0.12	0.12	0.122	0.121
	초기 C 농도 (ppm)	14.27	19.72	33.27	40.93	49.31
	탈착후 C 농도 (ppm)	18.22	24.41	38.09	45.03	54.85
Na <sub>3</sub> PO <sub>4</sub>	시료무게(g)	0.121	0.12	0.121	0.122	0.121
	초기 C 농도 (ppm)	14.27	16.85	22.6	26.56	29.90
	탈착후 C 농도 (ppm)	15.47	21.82	27.29	31.07	35.44
탈착후 용액내 C 농도 계산값*		16 ppm				

(주) \* : 폐수지로부터 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온이 모두 탈착용액내로 분리될 경우 용액내 C 농도

Table 3. Variation of C concentration in scrubbing solution with a change of concentration and volume of NaOH, Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> solution

탈착용액	농도(N)-용액부피(ml)	0.01-50	0.02-25	0.05-10
NaOH	시료무게(g)	0.2	0.2	0.2
	초기 C 농도 (ppm)	4.22	8.93	11.49
	탈착후 C 농도 (ppm)	9.93	19.89	53.08
Na <sub>3</sub> PO <sub>4</sub>	시료무게(g)	0.21	0.2	0.21
	초기 C 농도 (ppm)	8.31	10.96	14.47
	탈착후 C 농도 (ppm)	14.14	27.52	62.56
탈착후 용액내 C 농도 계산값		16 ppm	32ppm	80ppm

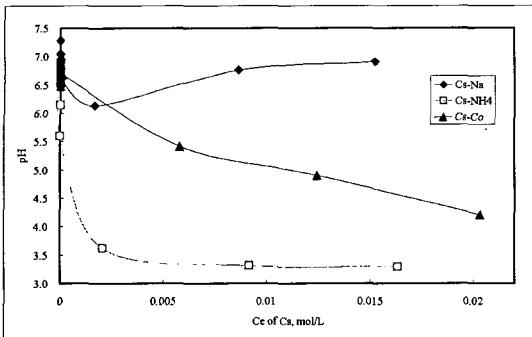


Fig. 11. Desorption efficiency of HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> ion with a function of NaNO<sub>3</sub> concentration/IRN-150 ratio.

이상의 결과로부터 NaOH와 Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 탈착용액을 사용할 경우 농도가 증가할수록 상기 용액내 공기 중 CO<sub>2</sub> 흡수량이 상당량 증가하여 탈착된 H<sup>14</sup>CO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온 뿐만 아니라 H<sup>14</sup>CO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 농도가 크게 높아지고 아울러 탈착율도 떨어져 탈착용액의 이차처리시 매우 불리할 것으로 판단되었다. 따라서 NaOH와 Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 탈착용액을 사용하기 위해서는 불활성기체 혹은 질소기체 분위기를 유지하는 글로브박스내에 처리하여야 하며 이는 처리공정상의 불리한 점으로 작용한다.

② NaNO<sub>3</sub> 용액에 의한 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온 탈착특성

폐수지 탈착공정에서는 고농도에서도 공기 중 CO<sub>2</sub> 흡수성이 없는 NaNO<sub>3</sub>용액이 더 유리할 것으로 생각되며, HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온 흡착량이 약 12 mg-C/g인 IRN-150 수지를 사용하여 NaNO<sub>3</sub> 농도 변화에 따른 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 탈착 특성 실험을 수행하였다. Fig. 11에 나타낸 바와 같이 용액농도/HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 흡착물농도 비가 3.5에서 약 90%의 탈착율을 나타내었다. 따라서 수지로부터 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 탈착율을 90%이상 얻기 위해서는 탈착용액내에 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온 몰수는 수지내 함유되어 있는 C 몰수의 3배 이상이 되어야 함을 알 수 있었다.

③ NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> 용액에 의한 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온 탈착특성

앞서 언급한 이온교환수지에 대한 양이온과 음이온의 친화도를 기준으로 탈착용액 후보 중 하나인 NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> 용액을 이용하여 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온만이 흡착된 IRN-150 폐수지로부터 탈착용액 농도 변화에 따른 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 탈착특성 실험을 수행하였다. 수지 사용량은 0.2 g(C 함유량 4 mg/g-수지)이었으며 50 ml NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> 탈착용액의 농도증가에 따른 용액내 C 농도 변화를 측정하였으며 이를 Table 4에 정리하였다.

표에서 보는 바와 같이 탈착전 초기 용액에는 공기 중 CO<sub>2</sub>가 흡수되지 않아 C 농도가 "0"이며, 탈착 후 용액내 C 농도가 전혀 검출되지 않았다. 이는 수지로부터 탈착이 전혀 이루어지지 않았을 가능성도 있으나 수지로부터 탈착된 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온은 용액의 pH가 산성영역으로 변화함에 따라 CO<sub>2</sub> 기체로 전후 휘발하여 용액내 C농도가 전혀 검출되지 않은 것으로 분석하였다. 이러한 연구 결과는 탈착된 C-14 이온의 기체화 특성 논문에서 별도로 언급하였다. 이상과 같이 NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> 탈착용액은 수지로부터 C 이온이 탈착됨과 동시에 CO<sub>2</sub> 기체로 휘발되어 NaNO<sub>3</sub> 용액이 비하여 C 이온 탈착율은 다소 낮겠지만 탈착후 용액내 함유된 C-14 핵종의 <sup>14</sup>CO<sub>2</sub>로의 기체화 단계가 필요 없을 것으로 판단되어 폐수지로부터 C-14 제거후 이를 처리하는 후단계 공정이 보다 단순해질 수 있을 것으로 판단된다.

IV. 결론

월성 원자력발전소내 폐수지 저장탱크의 용량확보와 폐기물 부피감소를 위하여 <sup>14</sup>C 핵종이 함유된 폐수지의 적절 처리방안을 제시하기 위한 기초 연구

Table 4. Variation of C concentration in scrubbing solution with a change of concentration of NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> solution

농도(N)	0.001	0.002	0.005	0.007	0.01	0.02	0.05	0.07	0.1
시료주입전 pH	5.71	5.56	5.39	5.33	5.25	5.19	5.01	4.98	4.84
시료주입후 pH	4.13	3.45	3.4	3.21	3.16	2.99	3.25	3.33	3.35
시료무게(g)	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
초기 C 농도 (ppm)	0	0	0	0	0	0	0	0	0
탈착후 C 농도 (ppm)	0	0	0	0	0	0	0	0	0

를 수행하였다. 월성 원자력발전소에서 사용중인 IRN-150 이온교환수지의 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 최대 흡착량은 약 11 mg-C/g이었으며, HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 탈착을 위한 후보 용액내 단일이온 종류별 흡착 평형량을 분석한 결과 각 이온별 수지에의 흡착 친화도는 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> > HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> ≥ H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub><sup>-</sup>로 나타났다. 아울러 각 이온별 경쟁 흡착에 의한 친화도를 평가한 결과 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 흡착량은 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>, H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub><sup>-</sup> 이온보다 훨씬 높기 수지로부터 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 탈착이 매우 용이한 것으로 나타났다. IRN-150 수지의 Cs<sup>+</sup>, Co<sup>2+</sup> 이온의 흡착평형 특성을 용액의 pH와 탈착용액의 양이온 흡착량과 비교하여 분석하였으며, 이온교환용량은 Co<sup>2+</sup> > Cs<sup>+</sup> > Na<sup>+</sup> > NH<sub>4</sub><sup>+</sup>의 순으로 감소하였고 이로부터 Co<sup>2+</sup>와 Cs<sup>+</sup> 이온이 탈착용액의 양이온들에 비해 상대적으로 이온교환수지에 대해 높은 친화성을 가짐을 알 수 있었다. IRN-150 폐수지내 양이온 금속의 탈착율을 최소화하기 위해서는 폐수지내에 존재하는 금속량과 탈착에 사용되는 양이온의 함을 포화 흡착용량에 근접한 정도로 조절하여야 하며, pH는 4.5이상으로 유지하여야 함을 알 수 있었다.

HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이 함유된 IRN-150수지로부터 탈착용액을 이용한 특성을 분석한 결과, Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 용액의 경우 저농도에서 효과적인 탈착특성을 보이지만 농도 증가시 공기중 CO<sub>2</sub> 흡수능이 증가하여 현장에서 탈착용액 처리시 적용의 어려운 점이 있으며, NaNO<sub>3</sub> 용액은 수지로부터 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 탈착율을 90% 이상 얻기 위해서는 탈착용액내에 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온 몰수는 수지내 함유되어 있는 C 몰수의 3배 이상이 되어야 함을 알 수 있었다. 아울러 NH<sub>4</sub>H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> 용액은 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 이온의 수지로부터 탈착율은 NaNO<sub>3</sub> 보다 낮으나 탈착과 동시에 CO<sub>2</sub>로의 기체화가 일어나, 실제 폐수지 처리시 <sup>14</sup>C 핵종의 수지로부터 제거 및 <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> 기체화에 의한 핵종 농축에 유리할 것으로 판단된다.

## 감사의 글

본 연구는 산업자원부에서 주관하는 전력산업연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

## 참고문헌

- [1] International Atomic Energy Agency(IAEA), Application of Ion Exchange Processes for the Treatment of Radioactive Waste and Management of Spent Ion Exchange, Technical Report Series No. 408, IAEA, Vienna(2002).
- [2] D. L. Moir, K. J. Ross, J. D. Chen and A. W. Tarr, E. L. Bialas, W. A. Boivin, D. C. Doern, D. L. Hoffman, and J. P. M. Ross, "Determination of <sup>14</sup>C in Spent Moderator Ion-Exchange Resin from Bruce Nuclear Generating Station A", J. Radioanal. & Nucl. Chem., 185(1), pp. 69-81(1994).
- [3] C. F. Wong and S. Vijayan, "Pre-Disposal Management of <sup>14</sup>C-Bearing Organic-Resin Wastes", Waste Management '04, Proc. of the Symposium on Waste Management, Tucson, Feb. 29-Mar. Vol. 4, pp. 1-10, 2004, Arizona, USA.
- [4] Wolsong Nuclear Power Plant, Final Safety Analysis Report, Wolsong NPP Unit 2,3,4, Vol. 7 (1995).
- [5] W. Sohn, D.W. Kang and W.S. Kim, "An Estimate of Carbon-14 Inventory at Wolsong Nuclear Power Plant in the Republic of Korea", J. of Nuclear Science and Technology, 40, pp. 604-613(2003).
- [6] M. S. Yim, F. Caron, "Life Cycle and Management of Carbon-14 from Nuclear Power Generation", Progress in Nuclear Energy, 48, pp 2-36 (2006).
- [7] 김 경덕, 양 호연 등, 원전 폐수지 처리기술(C-14 제거)개발, 전력산업연구개발사업보고서, (주)한수원-원자력환경기술원, TM.S03NJ05.M2005.04, pp. 187-188 (2005).
- [8] US NRC, Code of Federal Regulations, Title 10, Chapter 1, Part 61, Licensing Requirements for Land Disposal of Radioactive Waste, Federal

- Register.47, 57446 (1982).
- [9] International Atomic Energy Agency(IAEA), Management of Waste Containing Tritium and Carbon-14, Technical Report Series No. 421, IAEA, Vienna(2004).
- [10] F. Chang, Carbon-14 Removal from Spent Ion-exchanged Resins Phase III-Pilot Evaluation, Report No. 91-19H, Ontario Hydro Research Division, Toronto (1991).
- [11] Electric Power Research Institute(EPRI), The Treatment of Radioactive Ion-exchange Resins : Low-temperature Resin Oxidation Process, Report No. EPRI NP-7368s-M, EPRI, Palo Alto, CA (1991).
- [12] S.W. Long, The Incineration of Low-level Radioactive Waste : A report for the Advisory Committee on Nuclear Waste, Report No. NUREG-1393, Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC (1990).
- [13] S.M. Crosley, et al., "Treatment of Waste by the Molten Salt Oxidation Process at the Oak Ridge National Laboratory", Nuclear Waste Management and Environmental Remediation (ICEM '93), Vol. 3, pp. 149-154, 1993, New York.
- [14] C.M. Jantzen, D.K. Peeler and C.A. Cicero, Vitrification of Ion-exchange(IEX) Resins : Advantages and Technical Challenges, Report No. WSRC-MS-95-0518, Westinghouse Savannah River Co., Aiken, SC(1995).
- [15] "Ion Exchange Resin : Amberlite IRN 150-Industrial Nuclear Grade Mixed Bed Resin", The Rohm and Hass, Amberlite/Amberjet Product Data Sheets (1993).
- [16] 조 영일, 이 수구, 선 용호, 박 철휘, 산업폐수처리 공학-제 9장 이온교환, 동화기술출판사 (2002).
- [17] D. L. Parkhurst and C.A.J. Appelo, User's Guide to PHREEQC (Version 2), Water-Resources Investigations Report 99-4259.
- [18] I.H. Rhee, "Binary and Ternary Cation Exchanges : The Effect of Electrolyte Anions on Selectivity and Adsorption Capacity", J. of Korea Science Environ. Engng., 4(3), pp. 195-206 (1999).