

원전 폐액 방사능 방출 低減방안 A Scheme on Reduction of NPP Liquid Effluent Activity

김위수, 양양희

전력연구원

대전광역시 유성구 문지동 103-16

요 약

근년 들어 국내 각 원자력발전소의 폐액방사능 방출량은 대부분 0을 달성하고 있다. 그러나 세계 각 원전운영의 과거사례에 비추어 볼 때, 원자력 발전소에서 폐액방출이후 최종 환경으로 유출되기 직전 단계에서 폐액의 방사능을 다시 극도로 低減하게 된다면 PA측면에서 보다 좋은 효과를 가져다 줄수 있을 것으로 생각된다. 이를 위해 방출폐액을 미리 인공적으로 조성된 沈積床 (침적 bed)에 통과시킨 후 해양환경으로 방출하는 방안을 고안하였다. 침적상의 주 방사능 흡착매질로는 Zeolite 와 "Anthracite-모래 혼합매질"을 도출하였고 침적상 개념도를 작성하였다.

Abstract

Recently each domestic NPP has achieved zero release in liquid effluent activity. However, when looking past experiences in world nuclear power operation, it is thought that another maximum activity reduction in the released liquid effluent just prior to falling it into environment, if possible, will bring a good effect in PA viewpoint. A scheme passing that effluent through the Deposition Bed just before discharging it into ocean environment was devised for the above activity reduction measure. Both Zeolite and "the mixed "Anthracite-sand" were derived as the main activity adsorption medium used in the Deposition Bed, and the schematic drawings of this Bed were presented.

I. 서론

1. 용어 정의 또는 해설

- ODCM은 Off-site Dose Calculation Manual 의 약자로 발전소로부터 방출되는 기체 및 액체 폐기물 방사능에 의한 인근 주민피폭선량 계산을 위한 지침서이다.
- LLD(Lower Limit of Detection)은 검출하한치로 번역될 수 있다. 방사능계측기로 시료내 어떤 방사성핵종의 농도를 95%의 신뢰도로 측정할 수 있는 최소이다. 단위 및 관련인자를 표시하는 식은

$$LLD(\mu\text{Ci/cc}) = \frac{4.66S_b}{3.7 \times 10^4 \cdot \text{Eff.} \cdot V \cdot Y \cdot \text{Exp}(-\lambda \Delta t)}$$

로서 계측시간이 길수록 값이 낮아진다.

여기서 S_b : 자연 방사선(Background) 표준편차로서 $S_b = \sqrt{B/T_b}$ (B : Background Count, T_b : 계수시간)

Eff : 계측기효율

V : 시료의 부피

Y : 방사화학적 수율

λ : 핵종의 붕괴상수

Δt : 시료채취와 시료분석간의 경과시간

- N/D란 Non-Detectable의 약자로서 어떤 방사성 핵종의 농도가 LLD미만이 되어 검출될수 없는 수준이란 뜻이다.
- 복수기 냉각수 도관은 때로 CCWD(Condenser Cooling Water Duct)로 표현하였다.
- PA(Public Acceptance)는 원자력 발전소에 대해 일반인이 받아들이는 인식이다.

2. 국내 원전 폐액 운영관리 실적

가. 희유기체 및 삼중수소에 의한 주민 피폭선량

- (1) 원자력발전소 방사성 폐액중에 함유된 방사성 핵종은 크게 미립자류(Particulates) 희유기체류(Noble Gases), 그리고 삼중수소(Tritium) 세 종류로 구분할 수 있다. 이중 희

유기체는 발생되었다하더라도 연간 0.5Ci 미만이었으며 근년에 올수록 발생량이 거의 없다. 이는 희유기체의 반감기가 짧아 폐액저장 탱크의 방출전 저장기간(holding time)이 길수록 방사성 붕괴에 의한 자연소멸이 많아지기 때문이다. 이 희유기체 발생량의 90% 이상이 Xe-133 (반감기: 5.25일)이고 다음 Xe-135(반감기: 9.1시간), Ar-41(반감기: 1.83시간), Kr-87(반감기: 76분)의 순이다. Xe-133과 Xe-135 만으로 전체 발생량의 98%이상을 점한다. 이와 같이 희유기체는 짧은 반감기로 인해 인체내 침착성이 없어 내부피폭 문제가 없고 전체 발생량의 대부분을 차지하는 Xe-133의 경우 평균 γ 선 에너지가 0.03 MeV정도로 매우 작다. 따라서 희유기체의 인체 위해도가 매우 낮아 실제적으로 그 발생에 따른 문제가 없다.

(2) 자연 대기중에서도 중성자 우주선 (고 에너지 n^1)에 의해 $n^1 + {}^7N^{14} \rightarrow {}^1H^3 + {}^6C^{12}$ 의 반응식으로 연속적으로 극미량의 삼중수소(${}^1H^3$ 또는 H-3 로 표기함)가 생성된다. 경수로의 경우 여러 가지의 發生源이 있으나 약 90%는 “핵분열물질의 三分핵분열¹⁾ (Ternary Fission)에 의한 것”이며 나머지 대부분은 “원자로 냉각재중의 붕소의 중성자 반응(${}^6B^{10} + n^1 \rightarrow {}^1H^3 + 2\alpha$)등의 핵반응”에 의한 것이다. 중수로의 경우 주 생성원은 중수(重水)중 중수소(重水素 H^2)가 중성자 (n^1)와 $n^1 + {}^1H^2 \rightarrow {}^1H^3$ 과 같이 반응하여 생성됨으로 경수로에 비해 발생량이 훨씬 많다. 지금까지 삼중수소는 우리나라 경수로의 경우 호기당 년 평균 약 350 Ci, 그리고 중수로의 경우 호기당 년 평균 약 1,600 Ci 정도 발생 되었다. 삼중수소는 반감기는 12.3년으로 긴 편이나 인체내 평균체류 반감기(생물학적 반감기)가 보통의 물과 마찬가지로 10일 정도이고 또 그 방사선 에너지 (γ 선은 없고 18.6 KeV의 β 선 뿐임)가 극히 미약하여 희유기체와 함께 인체 위해도가 가장 낮은 핵종에 속하므로 법적으로 방출허용량이 매우 많은 핵종이다. 그렇지만 삼중수소의 실 방출량은 전체 방사능 방출량에서 99.99% 이상을 점하므로 근간 폐액방사능 방출에 의한 주민 피폭선량에 있어 삼중수소에 의한 분율은 경수로의 경우 아래<표 1>에서 보는바와 같이 92%정도 중수로의 경우 98%이상 분율을 점하고 있다.

1) U-235는 열중성자에 의한 핵분열시 보통 2개의 단편으로 분열되는데 대략 10,000번의 핵분열 중 1번은 3개의 단편으로 분열된다. 이를 삼분핵분열이라 하는데 이때 삼중수소가 생성된다.

<표 1> 폐액 방사능 방출에 의한 발전소 부지별 주민선량

		고 리	월 성	영 광	울 진
1995	주민선량(mrem)	7.84E-04	1.80E-03	2.20E-03	4.62E-02
	H-3 분율(%)	44.9	92.3	79.3	83
1996	주민선량(mrem)	7.65E-04	2.08E-02	3.14E-02	2.16E-02
	H-3 분율(%)	100	100	86.9	91
1997	주민선량(mrem)	5.90E-04	4.52E-03	3.54E-02	1.91E-02
	H-3 분율(%)	100	100	99.4	100
1998	주민선량(mrem)	4.41E-04	4.77E-03	3.03E-02	3.51E-02
	H-3 분율(%)	100	100	100	100
1999	주민선량(mrem)	2.01E-04	1.12E-02	2.17E-02	3.09E-04
	H-3 분율(%)	100	100	100	100
H-3 분율 평균(%)		89	98.5	93.1	94.8
주민선량 계(mrem)		2.78E-03	4.31E-02	1.21E-01	1.22E-01
호기-년수 계		20	11	19	13
호기당 연간 주민선량(mrem)		1.39E-04	3.92E-03	6.37E-03	9.41E-03
년3mrem기준에 대한 호기당 연간 주민선량 분율(%)		0.005	0.131	0.212	0.314

(3) 현행 법규상 폐액방출 방사능에 의한 주민피폭선량 법적제한치는 연간 3 mrem/호기 인데 <표 1>에 나타난 바와 같이 지난 95~99년도 기간중 발전소별 연도별 폐액방출에 의한 주민피폭선량은 가장 방출량이 많은 발전소도 법적제한치의 0.4%미만 수준으로 폐액은 매우 안전한 수준으로 운영 관리되고 있음을 알 수 있다.

(4) 삼중수소는 일단 방출되는 폐액에 함유된 이상 제거방법은 없고 원천적으로 원자로 냉각재나 감속재의 누설을 줄이는 방법외는 없다. 어느나라에서나 폐액방사능의 0 방출(0 release)이라고 할 때 삼중수소 방출은 제외할 수치이다.

나. 미립자류 방사능

따라서 본 논문에서는 비록 방출량은 삼중수소보다 매우 적으나 인체위해도가 상대적

으로 높고 폐액처리상 어느정도는 통제가능한 미립자류 (Particulates)핵종 저감을 ALARA측면에서 주 검토 대상으로 하고자 한다. 폐액에서는 아래 <표 2>에서 보는 바와 같이 여러 미립자류 핵종이 다양하게 존재하고 있는데 그 방사능 농도는 대략 $0\sim 10^{-3}\mu\text{Ci/cc}$ 수준이며 주핵종은 많이 방출되는 순으로 Co-58, Co-60, Cs-137, Cs-134, I-131 같은 핵종이 쏠 미립자류 핵종의 90~99%를 차지하고 있는데 이중 반감기가 짧은 I-131을 제외한 Co류와 Cs류 핵종의 제거 방안에 중점을 두고자 한다.

<표 2> 폐액중에 함유된 미립자류 방사성 핵종

핵 종	반 감 기	핵 종	반 감 기	핵 종	반 감 기
Cr-51	27.8 일	Nb-95	35 일	Cs-134	2.05 년
Mn-54	303 일	Sb-124	60.2 일	Cs-136	13.7 일
Fe-59	45 일	Sb-125	2.71 년	Cs-137	30 년
Co-57	271 일	I-131	8.05 일	Ag-110m	253 일
Co-58	71 일	I-133	20.9 시간	Zr-95	64 일
Co-60	5.27 년	I-135	6.6 시간	Sr-90	28 년
Sn-113	115 일	Ru-103	39.5 일	기타	-

II. 폐액 방출후의 개선 방안

1. 사 유

발전소 기체 및 액체 방사성 폐기물이 발전소 인근 일반인에게 미치는 危害度는 ODCM으로 산정된 주민피폭선량으로 표현된다. 폐액 방사능에 의한 주민피폭선량의 법적제한치는 연간 3mrem/호기인데 비해 상기 <표1>에서 나타난 바와 같이 1995~1999년도 기간중 폐액 방사능 방출실적은 방출량이 가장 많은 발전소가 법적제한치의 0.4%미만 수준으로 폐액을 매우 안전한 수준으로 운영관리해 왔다. 더욱이 근년 들어서는 국내 각 원자력발전소의 폐액방사능 방출량은 삼중수소 방출을 제외하고

대부분 0를 달성하고 있다. 그렇지만 세계 각 원전의 과거사례를 돌이켜 볼 때, 현재 국내원전의 양호한 실적이나 법적 규제요건을 떠나 일반적으로 방사선관리의 ALARA측면에서 폐액 방출이후 최종 환경으로 유출되기 직전 단계에서 저비용으로 방사능을 저감시킬수는 없겠는지를 강구해 보고자 한다. 발전소의 폐액처리계통은 정상운전기간이나 운전정지 및 보수기간등을 막론하고 계속 생성되는 폐액을 수집 처리하고 있는데 이 수집 처리용량은 제한적인데 반해 발전소 상태에 따라서는 방사능 준위가 높은 폐액이 일시에 다량 생성되는 경우 제염처리시간을 충분히 가질수 없어 불가피하게 미량의 방사능을 환경으로 방출하게 된다. 비록 폐액의 방사능 준위가 매우 낮거나 N/D 로 측정되어 제염처리가 불필요한 경우에도 상당한 시간이 소요되는데 참고 例로서 폐액감시탱크 1기가 가득차서 제염처리 하지않고 방출하는데 만 걸리는 최소한의 시간을 알아보자. 同탱크의 용량은 30,000gal 이고 부속펌프의 유량은 280gpm이라고 가정한다.

- ① 탱크내용물 재순환 시간 = 탱크용적의 2배/재순환 유량

$$= 2 \times 30000 \text{gal} / 280 \text{gpm} = 214 \text{분}$$
 - ② 탱크 폐액 시료 채취 및 분석 의뢰 ... 30분
 - ③ 폐액시료의 방사능 계측(50분) 및 “일반환경 요건 충족 여부 점검을 위한 화학 분석(60분)” ... 30분
 - ④ ③항에 근거한 폐액 방출 허가서 발급 및 운전부서에 통보, 방출 운전 준비 ... 30분
 - ⑤ 탱크 폐액 방출 운전 = $30000 \text{gal} / 280 \text{gpm} = 107 \text{분}$ (*방출 운전중인 탱크내로는 폐액 접수를 할수 없음)
- ① + ② + ③ + ④ + ⑤ = 8시간 11분이 된다.

만약 이 탱크 폐액의 방사능 준위가 높아 제염처리 한다면 최소 수시간 더 소요 될 것이다. 이와 같이 폐액처리에 시간이 많이 소요됨으로 폐액시료의 방사능 계측시간은 환경방사능 시료계측처럼 수만초 정도의 계측시간을 할애할 수는 없고 제한적이다. 따라서 그 계측시간은 폐액내 모든 未知 감마 핵종의 LLD값(= $5.6 \times 10^{-7} \mu \text{Ci/cc}$) 이하에 오도록 정해 지는데 계측기 효율등의 차이로 인해 발전소별로 다소 차이는 있으나 1000초~3600초 범위내에서 평균 40분 내외로 설정하고 있다. 따라서 극소의 차이이긴 하지만 폐액시료의 LLD는 환경방사능 시료의 LLD 만큼 낮출 수는 없다. 우리가 시료에 대한 방사선 계측을 할 때 사용하는 용어인 N/D는 0와 똑같다는 개념은 아니며 그 값이 LLD미만으로서 엄밀히 말하면 0~LLD값 사이에 있다는 뜻이고 어

면 경우는 LLD값에 매우 근접할 수도 있을 것이다. 그러나 LLD값 자체가 너무나 극소의 수치이므로 실질적으로는 $N/D \approx 0$ 이며 폐액이 N/D값으로 수집회 (1회 방출량은 대략 $20 \sim 100 \text{ m}^3$) 방출 되었다고 해서 어떤 의미 있는 분량의 방사능이 방출되었다고는 볼수 없다. 아래 <표 3>에서 2개 호기당 연간 평균 방출량은 $208,002 \div 13.5 = 15,406 \text{ m}^3$ 이다. 여기서 보통 2개 호기가 한 배수구를 공용하기 때문에 2개 호기 단위로 하였고 13.5는 2개 호기의 13.5배를 뜻한다.

<표 3> 지난 3년간 발전소별 폐액 방출량 (단위; m^3)

	1995	1996	1997	계
고리 1,2호기	2,766	2,723	2,169	7,658
고리 3,4호기	9,184	9,379	10,427	28,990
월성 1,2호기	22,536	17,557	20,747	60,840
영광 1,2호기	12,062	15,588	14,000	41,650
영광 3,4호기	12,289	14,912	15,678	42,879
울진 1,2호기	9,518	8,633	7,834	25,985
합 계	68,355	68,792	70,855	208,002

그러나 어떤 2개 호기 발전소에서 10년 정도의 기간에 걸쳐 방출된 N/D 값의 방사능이 모두 다 적산 된다면 “발전소 해역 환경에 영향을 나타낼수 있는” 분량의 방사능이 될 수 있을 것인지 알아보자. 폐액 중에 함유된 여러가지 핵종중 반감기가 짧을 수록 잔존량이 빨리 소멸되므로 방출량이 많으면서 반감기가 비교적 긴 Co-60, Cs-137, Cs-134 세 핵종만 다음과 같이 방출된다고 다소 보수적으로 가정해 본다.

- 매 방출회수 중 이들 핵종이 극미량 존재하면서 검출안되고 N/D로 되는 경우가 90%
- 발전소마다 차이가 있지만 이들 핵종의 $LLD = 8 \times 10^{-8} \mu\text{Ci/cc}$
- N/D일 때 실제 방사능량은 LLD의 50% 수준

$$\begin{aligned} \text{그러면 } & 15,408 \text{ m}^3 / 2 \text{ 개 호기} \cdot \text{년} \times 10 \text{ 년} \times 0.9 \times 8 \times 10^{-8} \text{ Ci/m}^3 \times 0.7 \times 3 (\text{핵종수}) = 2.33 \times 10^{-2} \text{ Ci} \\ & = 23.3 \text{ mCi} \end{aligned}$$

10년간의 N/D방출 방사능량을 간략히 계산하기 위해 5년 시점에서 이들 3개 핵종이 일시에 각각 10mCi, 10mCi, 3.3mCi 방출되었고 편의상 Co-60 과 Cs-134의 반감기는 각각 5년과 2년으로 한다. 그러면

$$\begin{aligned} - \text{Co-60} & : 10 \text{ mCi} \times (1/2)^2 = 2.5 \text{ mCi} \\ - \text{Cs-137} & : 10 \text{ mCi} \times (1/2)^{1/3} = 8 \text{ mCi} \\ - \text{Cs-134} & : 3.3 \text{ mCi} \times (1/2)^5 = 0.1 \text{ mCi} \end{aligned}$$

에서 도합 10.6 mCi 정도가 되며 비슷한 방법으로 15년, 20년 또는 30년 경과시 N/D값 방출방사능량을 概算할 수 있을 것이다. 이 N/D 방사능량과 “既 검출 기록 폐액 방사능”이 해양환경으로 방출되면 대부분은 조류에 실려 확산 희석되고 일부는 배수구 주변 海底土나 海底 底棲生物에 침적된다. 물론 발전소에서 배출되고 있는 폐액방사능의 분량이 실질적으로 주민건강에 조금이라도 영향을 미칠수 있는 분량과는 I-2-가 항에서 살펴본 바와 같이 아예 거리가 멀지만 방사능이 많이 방출될수록 배수구 주변의 해수, 해저토나 해양저서생물의 방사능 준위는 자연준위 보다 조금이라도 높게 나타날수 있을 것이고 이럴 경우 실질적 영향은 전연 없다 할지라도 PA(Public Acceptance)측면에서 부정적 효과를 가져다 줄 것이다. 그러므로 발전소 배수구 주변 환경에 이런 방사능 침적이 이루어지기 전에 방출되는 방사능의 상당부분을 미리 인공적으로 조성된, 無動力의 沈積床 (침적 bed)에 침적시킨후 해양 환경으로 방출케 한다면 보다 바람직할 것이다. 이 침적상에 들어가는 방사능 흡착매질에서 침적 포화에 근접하면 새 흡착매질로 교체하고 사용된 흡착매질은 그 상태에 따라 관련 폐기물 처리 규정에 따라 조치하면 된다.

2. 침적상 흡착재의 선정

가. 水처리에 있어 Zeolite의 특성

Zeolite는 자연광물로서 산출되고 가공처리된다. 또한 인공적으로 합성되기도 하는데 제품형태로는 ① 분말(100-400 mesh), ② 입자(20-50 mesh), ③ pellet(1/16 - 1/32 inch 직경 및 1-5mm길이) 가 있다. Zeolite는 AlO_2/SiO_2 단위의 결정에 의해 형성된 거대분자체이다. 이것의 가장 작은 단위인 AlO_2/SiO_2 는 사면체 구조인데 여기에서 O_2 는 원자간을 연결하여 별첨 1 그림의 왼쪽과 같이 四面體 망구조를 형성하고 있다. 별첨 1그림의 오른쪽은 Zeolite종류중 Mordenite결정체의 공간적 형상을 보이고 있다.

Al을 가진 각각의 사면체는 Al 원자가 +3가이고 산소원자가 -2가여서 전체적으로 -1가의 전기적 성질을 띠게 된다. 결정의 전하를 중성으로 유지하기 위해 Na , K , Ca , Mg , Sr 등의 양이온이 결정내에 존재하며 이들 양이온은 움직임이 자유롭기 때문에 Zeolite의 양이온 교환성질을 지배하게 된다. Zeolite는 위 그림에서와 같이 공극(空隙)이 엄청나게 많은데 이 공극에는 ion 이나 작은 분자가 들어가며 나머지 공극의 대부분은 물로 채워진다. Zeolite의 종류나 특성은 주로 알루미늄(AlO_2) 對 실리카(SiO_2)의 조성비에 따라 결정되는데 종류별로 산성도와 열적 안정성, 이온

교환능 및 이온선택성에 차이가 난다. 그외 양이온에 대한 물분자의 比, 내부공극과 미세 통로의 크기도 이온교환 특성에 중요한 역할을 담당한다. 실리카 함량에 비해 알루미늄이 함량이 낮을수록 Cs, K, Ag, NH₄ 같은 1가 이온 선택성이 강하고 알루미늄이 함량이 높을수록 Sr, Ca, Co, Ni 같은 2가 이온 선택성이 강해진다. 이러한 천연 Zeolite에 포함되는 광물로는 Chabazite, Mordenite, Erionite, Phillipsite, Clinoptilolite, Analcite등 30종 이상이 알려져 있으며 미국, 프랑스, 독일, 이태리, 불가리아, 멕시코, 일본 등 여러나라에 분포한다. 국내에는 경북 동해안 특히 영일 지방에 흡착능력이 뛰어난 Ca-Clinoptilolite와 Mordenite가 분포하고 있는 것으로 알려졌다. 아래 표는 대표적인 천연 Zeolite의 이온교환능 및 선택성을 나타낸다.

<표 4> Zeolite의 종류별 이온교환능 및 선택성

Zeolite 종류	양이온교환용량(meq* /g) (Anhydrous)	이온교환 선택성
Analcite	4. 95	Complicated by ion-sieving
Chabazite	4. 95	TI>Cs>K>Ag>Rb>NH ₄ >Pb>Na = Ba>Sr>Ca>Li
Clinoptilolite	2. 64	Cs>K>NH ₄ >Na>Sr>Ca>Mg
Erionite	3. 86	Cs>Sr>K>Na
Mordenite	2. 64	Cs>K>NH ₄ >Ba>Sr>Ca>Mg
Synthetic(A-51)		Ag>Zn>Sr>Ba>Ca>Co>K>Cs

* 이온교환용량 단위로서 1eq=6.023 e²³ 의 1가(+ 혹은 -)이온을 교환할수 있음을 의미. 1meq=1/1000eq

천연 Zeolite를 폐액의 처리에 응용하는 방법에 관해 많은 연구가 행해졌다. 참고문헌 3번 논문내용에 의하면 Zeolite 입자크기는 작을수록 방사성 물질 제거능이 커진다. 또한 월성 1호기의 전형적인 폐액 탱크수에 방사성 동위원소를 첨가 Cs-137농도가 0.9μ Ci/cc, Co-60 농도가 0.35μ Ci/cc 인 모의폐액을 만들고 이 폐액을 평균 입도 0.9mm인 국내산 천연 Zeolite로 처리시험한 결과 CV²⁾ 250 에서도 Cs-137의 Breakthrough³⁾에는 도달되지 않았으며 그때의 Cs-137과 Co-60의 제염계수는 각각 49와 4.7로 나타났으므로 만약 50ton의 폐액을 200 l의 Zeolite로 처리할 경우 제염계수는 10 이상이 될 것으로 추정하였다. 또한 상기논문에는 Zeolite로 Cs, Co, Sr 등이 함유된 폐액의 貫流시험 결과 각각 300CV, 300CV 및 800CV에서 Breakthrough에 도달한 외국사례가 있음을 언

2) Column Volume 通水용량비 : 통과한 폐액의 량/칼럼에 충전된 이온교환체의 량
3) 貫了로 번역되며 제거능포화의 뜻임

급하고 있다. 참고문헌 19번 논문 내용에 의하면 Krsko발전소⁴⁾ 폐액을 pH=10의 column test로 Zeolite를 先처리하고 Fe(OH)₃ 계열 응집제로 後처리하였는데 그 결과 先처리에서는 Cs류의 대부분, Co류는 5% 및 Mn-54는 85% 정도의 방사능이 제염되었고 이 때 제염되지 못한 colloid 형태의 Co류 및 기타 방사능이 後처리에서 제거되어 도합 Cs-137/134의 99.9% 이상, Mn-54는 99.8% 이상 그리고 Co-60/58 의 약 90%의 제염결과를 얻었다. 또한 동 19번 논문은 “Zeolite의 세멘트 고화체가 유기이온교환수지 고화체에 비해 더 높은 강도와 감용률을 나타내었다”고 한다. 이처럼 Zeolite는 폐액중 Cs, Sr 등의 양이온에 대해 양호한 제거능을 가지며 가격이 싸고 또한 핵종을 강하게 흡착하며 높은 염농도와 같은 불량한 수질조건에서도 Cs, Sr 등 특정핵종을 선택적으로 잘 흡착하는 성질이 있다. 이와 같이 Zeolite의 방사성 핵종에 대한 선택성으로 인해 이온교환공정의 효율도 높이고 폐수지 발생량도 대폭 감소시킬 뿐 아니라 수명도 유기이온교환수지보다 5~10배 긴 것으로 보고되고 있다.

나. 용존 부유물 사전흡착

위 가 항에서 Zeolite의 특성에 대해서 알아보았다. II-3-나 항에서 본 바와 같이 흡착재는 Cs류와 Co류 핵종을 포집토록 선정되어야 한다. Zeolite는 양이온을 잘 제거하되 특히 Cs류에 대한 선택성이 매우 강해 선택성 이온교환설비에서도 Cs류 핵종 흡착용으로 사용되고 있다. 또한 II-2-나 항에 기술된 이동형 폐액 제염기에서도 사용되어 그 성능이 입증된 바 있다. 국내에서도 상당량 생산되며 가격도 ℓ 당 1,000원정도로 유기이온교환수지에 비해 저렴하여 Cs류 핵종 제거를 위한 흡착제로서 아주 적합한 반면 Co류 이온선택성은 그리 크지않다. 한편 Zeolite의 양이온 흡착능력을 높이기 위해서는 폐액중의 각종 부유물질을 최대한 제거토록 하여야 한다. 폐액 중에 함유되어 있는 전체 방사성 Co류 중 50% 이상이 0.45 μ m 여과기로 처리 가능한 상태로 존재하며 나머지는 용해된 상태로 존재한다. 용해된 Co는 대부분 2가지 양이온 상태로 존재하지만 조건에 따라 3가, 4가 또는 1가 양이온 상태가 되기도 하며 pH 11 이상의 조건하에서는 음이온으로도 존재가 가능하다. 또한 수용액 중에서 pH 8~9 이상이 되면 Co(OH)₂ 침전이 생성되어 입자 또는 콜로이드 형태로도 존재가 가능하다. 또한 가장 크게 문제가 되는 경우로, 폐액 중에 포함된 유기화합물들과 결합하여 착체를 형성함으로써 이온교환이 어려운 형태로 존재하기도 한다. 따라서 이러한 Co류 핵종의 복잡한 화학 특성 때문에 폐액 중의 Co와 각종 유기 부유물질을 제거하는데 응집제를 사용하면 좋겠지만 응집제 용해를 위한 교반, pH조정, floc제거문제 등의 복잡성이 수반되므로 본 설비의

4) 유고슬라비아의 경수로 발전소

간편성 및 경제성 취지와 맞지않는다. 따라서 폐액의 Zeolite 유입전 처리목적으로서 일반용수처리에서도 활용되는 “Anthracite와 모래를 1: 1로 혼합한 매질”을 사용함이 바람직한것으로 생각된다. Anthracite(無煙碳)는 흑색 多孔性으로 비중은 1.35 - 1.7, 조성은 탄소 90 -95%, 수소 2 - 4.5% 및 질소 3 - 5.5%이며 수중의 탁도, colloid 물질, 박테리아 등 유기부유물질을 제거하는 여과재로서 활성탄과 비슷한 용도로 사용되고 있다. 가격은 ℓ 당 450원 정도이다.

다. 흡착제의 선정 및 배열

나 항의 ‘Anthracite-모래’ 혼합매질 자체의 유동을 줄이고 폐액의 흐름을 조절하며, 이 매질유입 前後 약간의 여과처리를 위해 본 매질 전후에 짧은 자갈구역을 두고자 한다. 지금까지 서술한 바 방출된 폐액이 침적상에서 어떠한 흡착제 경로를 갖는지 요약하자면 아래 그림과 같다.



3. 침적상 설계지침

가. 일반사항

- 본 설비 설치 운영으로 인해 기존 옥내 폐액처리 설비의 운영관리 방법 및 성능에 불리한 영향을 주지 않아야 한다.
- 본 설비가 어떤 이유로 사용할 수 없을 때는 기존 설비를 종전과 같이 운영할 수 있도록 한다.
- 본 설비는 설치, 운영 및 보수가 용이 간편하게 설계한다.

나. 기존 배관과의 연결

- 침적상 유입배관은 최종 방출단 밸브 이후 복수기 냉각수 도관(CCWD)으로 가는 배관을 연장하여 설치한다. 침적상 유출관은 가까운 CCWD에 연결한다.
- 신설배관은 기존배관과 같은 재질, 규격으로 한다.

다. 위치 및 설치 단위

- 배수 감시기와 가까운 옥외지면에 2개호기 단위로 1조를 설치 한다.

라. 흡착제 재질

- 유기 이온교환 수지에 비해 가격이 저렴하고 수명이 긴 것으로 한다.
- 폐액통과 처리 공정에서 Cs류와 Co류 각각의 평균 제염계수가 5이상 되도록 한다.

마. 흡착재 내 폐액의 유동

- 자연중력에 의하도록 하되 속도는 매우 완만하게 한다.
- 폐액은 주로 흡착재 공극 사이를 통과하면서 유동토록 한다.

바. 구조 및 용량

- 구조물은 전체적으로 얇고 평평한 구조로 경사는 완만하고 일정하여야 한다.
- 재질은 내구성이 크고, 불연성 및 내 부식성이며 표면은 고르고 치밀하며 방수 및 불투수성이어야 한다. 또한 표면에 방사성오염이 될 경우 내부로 침투침착이 안되고 제염이 용이하도록 한다.
- 폐액은 유출관의 외부로 넘치지 않도록 한다.
- 흡착재 부피는 최종 폐액방출탱크중 가장 용량이 큰 탱크 실용량(working capacity)의 40% 정도로 한다.
- 흡착재의 장전 및 교체가 용이한 구조로 한다.
- 흡착재의 시료채취나 외관 육안점검등 흡착재 효율성능점검이 용이한 구조로 한다.
- 빗물 등 降水가 혼입되지 않도록 한다.

4. 침적상 설계개념

가. 구조물 재질

- 원전 원자로 건물 또는 보조건물 바닥과 동등한 규격의 철근 콘크리트로 한다.
- 표면 도장(Painting)도 상기 건물 바닥 도장과 동등한 규격으로 한다.

나. 흡착재

- 흡착재는 전술한 바와 같이 Anthracite-모래 혼합매질, 잔 자갈(직경 5~25mm) 및 Zeolite로 한다.
- Zeolite는 고리 및 울진발전소에 설치될 선택성 이온교환설비에 사용되는 것과 동등한 종류로 한다.
- Anthracite와 모래는 발전소 등에서 일반용수처리때 사용하는 것과 동일한 것으로 한다.
- Zeolite유입측과 유출측은 가늘고 튼튼한 wire mesh로 막아 매질의 이동을 막는다.

- 흡착재와 폐액간의 접촉을 늘이기 위해 흡착재 상부표면은 wave형으로 한다.
- 흡착재의 평균깊이는 별첨2 그림과 같다.

다. 기존배관과의 연결

- 최종 방출단 밸브이후 CCWD로 가는 배관을 연장하여 설치한다. 연장배관은 기존배관과 같은 재질, 규격으로 한다.
- 침적상 출구배관은 CCWD에 연결한다.
- 기존배관과의 연결 개념도 ; 별첨2 도면 참조

라. 구조물 개요도

- 방출폐액 탱크용량 100m³기준(Non-scale)
- 내용 ; 별첨 1, 2 도면 참조

III. 결 론

1. 폐액방사능 방출관리

폐액 방사능에 의한 주민피폭선량의 법적제한치는 연간 3mrem/호기인데 1995~1999년도 기간중 폐액 방사능 방출실적은 방출량이 가장 많은 발전소가 법적제한치의 0.4%미만 수준으로 폐액을 매우 안전한 수준으로 운영관리해 왔다. 폐액방출 방사능을 희유기체, 삼중수소, 미립자 방사능 세가지로 구분할 때 희유기체는 아무런 문제가 되지 않았다. 삼중수소는 전체폐액 방사능 방출량의 99.99%이상을 차지하고 또한 주민선량에서 차지하는 분율도 경수로의 경우 92%, 중수로의 경우 98%이상을 점하지만 삼중수소는 일단 방출되는 폐액에 함유된 이상 제거방법은 없고 원천적으로 원자로 냉각재나 감속재의 누설을 줄이는 방법외는 통제할 방법이 없다. 외국 발전소에서도 자주없는 “삼중수소를 제외한 β - γ 방사능의 0 방출”을 달성 하였다. 이는 전반적으로 각 발전소의 운전유지 상태도 좋아졌기 때문이기도 하겠지만 무엇보다도 폐액처리 관리수준이 종전보다 대폭 향상 되었기 때문으로 판단 된다. 그러나 방사성 폐기물을 처리함에 있어 ALARA개념으로 유지해야 된다는 관점에서 간과되지 않고 강조되어야 할 점이나 새로운 방안이 있는지를 살펴보았다. 따라서 본 논문에서는 비록 방출량은 삼중수소보다 매우 적으나 인체위해도가 상대적으로 높고 방출저감측면에서 어느정도

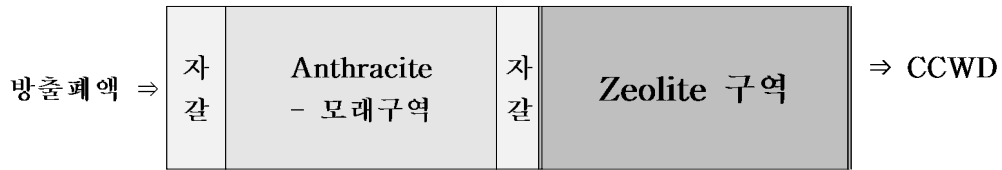
는 통제가능한 미립자류 핵종저감을 주 검토대상으로 하였다. 폐액에서는 여러가지 미립자류 핵종이 다양하게 존재하고 있지만 그 중에서 가장 많이 방출되는 순으로 Co-58, Co-60, Cs-137, Cs-134, I-131 같은 핵종이 쏠 미립자류 핵종의 90~99%를 차지하고 있는데 이중 반감기가 짧은 I-131을 제외한 Co류와 Cs류 핵종의 제거 방안에 중점을 두었다.

2. 沈積床 설치운영

지금까지 발전소외로 방출된 폐액은 각각 환경관리 감시측면과 PA개선측면에서 업무관리가 이루어지고 주의관심을 기울여왔다고 볼수 있다. 환경관리 감시측면으로서는 확립된 환경방사능 감시 Program에 따라 배수구주변의 각종시료를 채취 분석평가하는 업무와 온배수 방출에 따른 생물생태학적 환경변화추이 감시업무를 연중 지속업무로서 수행해 오고 있다. PA개선측면의 사업으로서는 월성발전소 부지내에 온배수를 이용한 “대규모 어패류 종묘배양장 겸 축양장”을 설치하여 1999년 부터 운영해오고 있으며 영광원전부지에서는 이미 어류축양장을 설치하여 1995년부터 운영해오고 있다. 이런 어패류 종묘배양장이나 축양장의 설치운영에는 상당한 규모의 예산이 사용되지만 PA개선을 위해 감수하고 있다. 본 논문에서는 폐액방출이후 위에서 말한 측면에 덧붙여 최종 환경으로 유출되기 직전 단계에서 低비용으로 폐액의 방사능을 低減할수 있겠는지를 강구해 보았다. 발전소의 폐액 처리계통은 정상운전 기간이나 운전정지 보수기간이나를 막론하고 계속 생성되는 폐액을 수집 처리하고 있는데 이 수집 처리용량은 제한적인데 반해 발전소 상태에 따라서는 방사능 준위가 높은 폐액이 일시에 다량 생성되는 경우 제염처리 시간을 충분히 가질수 없어 불가피하게 미량의 방사능을 환경으로 방출하게 되는 경우가 있다.

비록 폐액의 방사능 준위가 매우 낮거나 N/D 로 측정되어 제염처리가 불필요한 경우에도 폐액처리에 상당히 많은 시간이 소요됨으로, 폐액시료의 방사능 계측시간은 환경방사능 시료계측처럼 수만초 정도의 계측시간을 할애할 수는 없고 평균 40분 내외로 제한적이다. 따라서 극소의 차이이긴 하지만 폐액시료의 LLD는 환경방사능시료의 LLD만큼 낮출수는 없다. 우리가 시료에 대한 방사선 계측을 할 때 사용하는 용어인 N/D는 0와 똑같다는 개념은 아니며 엄밀히 말하면 0~LLD값 사이에 있다는 뜻이고 어떤 경우는 LLD값에 매우 근접할 수도 있다. 그러나 LLD값 자체가 너무나 극소의 수치이므로 실질적으로는 $N/D \approx 0$ 이며 폐액이 N/D값으로 수집회 (1회 방출량은 대략 20~100m³) 방출 되었다고 해서 어떤 의미 있는 분량의 방사능이 방출되었다고는 볼수

없다. 어떤 발전소에서 장기간에 걸쳐 이 N/D 방사능량과 “既 검출 기록된 폐액 방사능”이 해양환경으로 방출되면 대부분은 조류에 실려 확산 희석되고 일부는 배수구 주변 海底土나 海底 底棲 生物에 침적된다. 물론 발전소에서 배출되고 있는 폐액 방사능의 분량이 실질적으로 주민건강에 조금이라도 영향을 미칠수 있는 분량과는 아예 거리가 멀지만 방사능이 많이 방출될수록 배수구 주변의 해수, 해저토나 해양저서 생물의 방사능 준위는 자연준위 보다 조금이라도 높게 나타날수 있을 것이고 이럴 경우 실질적 영향은 전연 없다 할지라도 PA(Public Acceptance)에 부정적 효과를 가져다 줄수 있다. 그러므로 발전소 배수구 주변환경에 이런 방사능 침적이 이루어지기 전에 방출되는 방사능의 상당부분을 미리 인공적으로 조성된 無動力 沈積床 (침적 bed)에 침적시킨후 해양환경으로 방출함이 바람직하게 생각된다. 이 침적상에 들어가는 방사능 흡착매질에서 침적 포화에 근접하면 새 흡착매질로 교체하고 사용된 흡착매질은 그 상태에 따라 관련 폐기물처리 규정에 따라 조치하면 된다. I-2 항과 위 1항에서 본 바와 같이 흡착제는 Cs류와 Co류 핵종을 포집토록 선정되어야 한다. Zeolite는 양이온을 잘 제거하되 특히 Cs류에 대한 선택성이 매우 강해 선택성 이온교환설비에서도 Cs류 핵종 흡착용으로 사용되고 있다. 국내에서도 상당량 생산되며 가격도 유기이온 교환수지에 비해 저렴하여 Cs류 핵종 제거를 위한 흡착제로서 아주 적합한 반면 Co류 이온선택성은 그리 크지 않다. 한편 Zeolite의 양이온 흡착능력을 높이기 위해서는 폐액 중의 각종 부유물질을 최대한 제거토록 하여야 한다. 폐액 중에 함유되어 있는 전체 방사성 Co류 핵종 중 50% 이상이 $0.45\mu\text{m}$ 여과기로 처리 가능한 상태로 존재하며 나머지 용해된 Co는 대부분 2가지 양이온 상태로 존재하지만 조건에 따라 3가, 4가 또는 1가 양이온 상태가 되기도 하며 음이온으로도 존재가 가능하다. 또한 수용액 중에서 pH 8~9 이상이 되면 $\text{Co}(\text{OH})_2$ 침전이 생성되어 입자 또는 콜로이드 형태로도 존재가 가능하다. 또한 가장 문제가 되는 경우로, 폐액 중에 포함된 유기화합물들과 결합하여 착체를 형성함으로써 이온교환이 어려운 형태로 존재하기도 한다. 따라서 이러한 Co의 복잡한 화학 특성 때문에 폐액 중의 Co와 각종 유기 부유물질을 폐액의 Zeolite유입전 제거하는 목적으로서 일반용수처리에서도 활용되는 “Anthracite와 모래를 1: 1로 혼합한 매질”을 사용하고자 한다. Anthracite(無煙炭)는 흑색 多孔性으로 수중의 탁도, colloid 물질, 박테리아 등 유기 부유물질을 제거하는 여과재로서 활성탄과 비슷한 용도로 사용되고 있다. ‘Anthracite-모래’ 혼합매질 전후에 짧은 자갈구역을 두고자 한다. 방출된 폐액이 침적상에서 갖는 흡착재 경로는 다음 그림과 같이 요약된다.



여기에서 ‘Anthracite-모래’ 혼합매질은 유기부유물질등에 함유된 방사능을 Co류 핵종

위주로 흡착하고, 좁막한 자갈구역은 Anthracite-모래 혼합매질의 유동을 막고 폐액의 흐름을 조절하며 약간의 여과작용도 하게된다.. Zeolite구역에 들어가는 폐액은 유기부유물질등이 많이 제거된 상태이기 때문에 Zeolite매질은 여러 가지 양이온 특히 Cs류 핵종을 효율적으로 흡착할 것으로 기대된다. 본문 II-4항에서는 방출폐액 탱크용량이 100m³일때를 기준으로 침적상의 설계개념을 例示的으로 제시해 보았다. 그러나 구체적인 침적상 설계는 각 발전소의 폐액처리설비 설계 및 부지조건을 반영하여 수행하게 된다. 침적상이 설치되면 침적상 구역은 비록 방사성오염확산 가능성은 극히 희박하 할지라도 “방사성 폐액을 처리한다“는 특성상 관리구역으로 설정 운영해야 할 것이다. 또한 흡착재 시료채취 및 그 주기, 시료분석 및 평가, 흡착재 교체, 설비건전성 점검, 사용한 흡착재 처리, 등의 사항을 규정한 운영관리 절차를 제정시행해야 할 것이다. 끝으로 이 침적상 idea는 새로운 착상으로서, 폐액 방출관련 PA개선을 위한 하나의 방안으로 제시하는 것이다.

첨부 ; 1. Zeolite 의 4면체 구조

2. 기존배관과의 연결개념도 및 침적상구조물 평면도

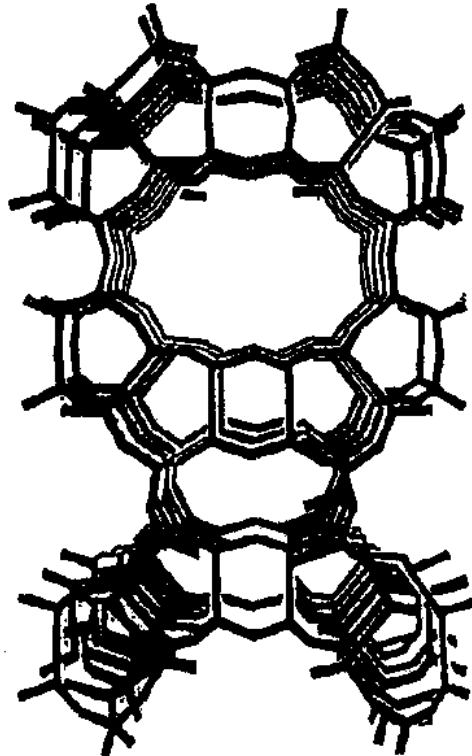
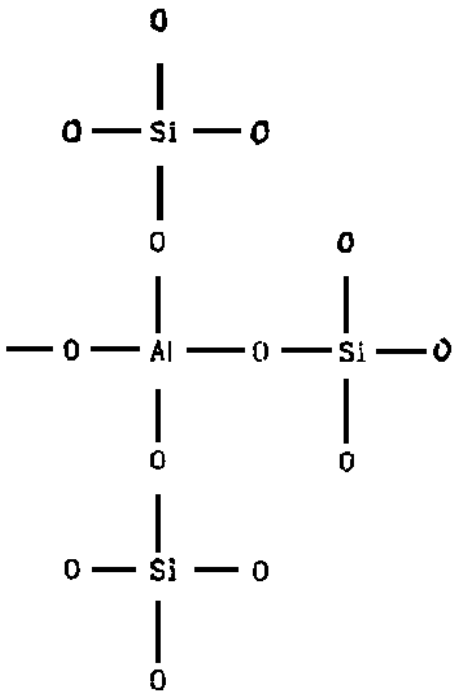
3. 침적상 구조물의 측면도. 끝.

參 考 文 獻

1. 과학기술부 고시 제 2001-2호 「방사선 방호 등에 관한 기준」
2. 과학기술부 고시 제 96-31호 「원자력 관계시설 주변의 환경조사 및 영향평가에 관한 규정」
3. 도정열(Jeong-Yeul Doh) Treatment of Low-level Liquid Waste Using Natural Zeolite」 제4차 WANO-TC Seminar Taiwan 1991. 12
4. 한전 고리원자력 연수원 「화학일반 실무」 1992. 7.
5. 한국전력 「1996년도 원자력 발전소 방사선 관리년보(1996 - 1999)」
6. 한국전력 「원자력 발전소 주변 환경방사능 조사보고서 (1997-1999년보)」
7. EPRI NP-5786 「Pre-treatment and Selective Materials for Improved Processing of PWR Liquid Radio-active Wastes」 July 1988
8. Seiko EG&G Co., Ltd 「Periodic Table with Nuclides」 1986
9. Zvonko Lovasic, Krsko Nuclear Power Plant, Yugoslavia 外 2人 「The Possibilities of Use of Zeolite and Hydroxide Carrier in Liquid Radio-active Waste Treatment」 98 Waste Management Symposium 1998. 2.28—3.3

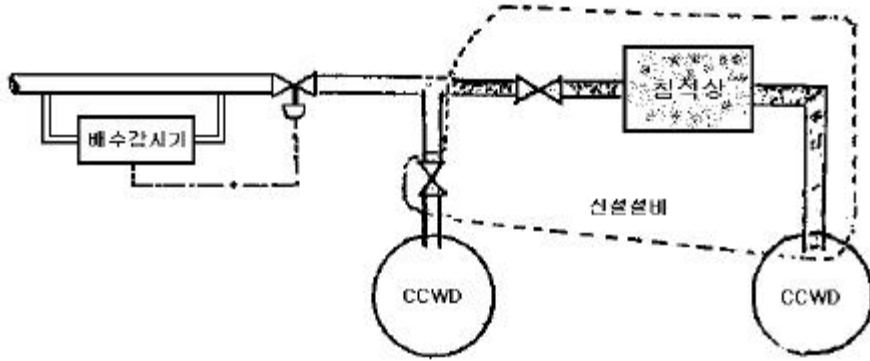
첨부 1

○ Zeolite의 4면체 구조

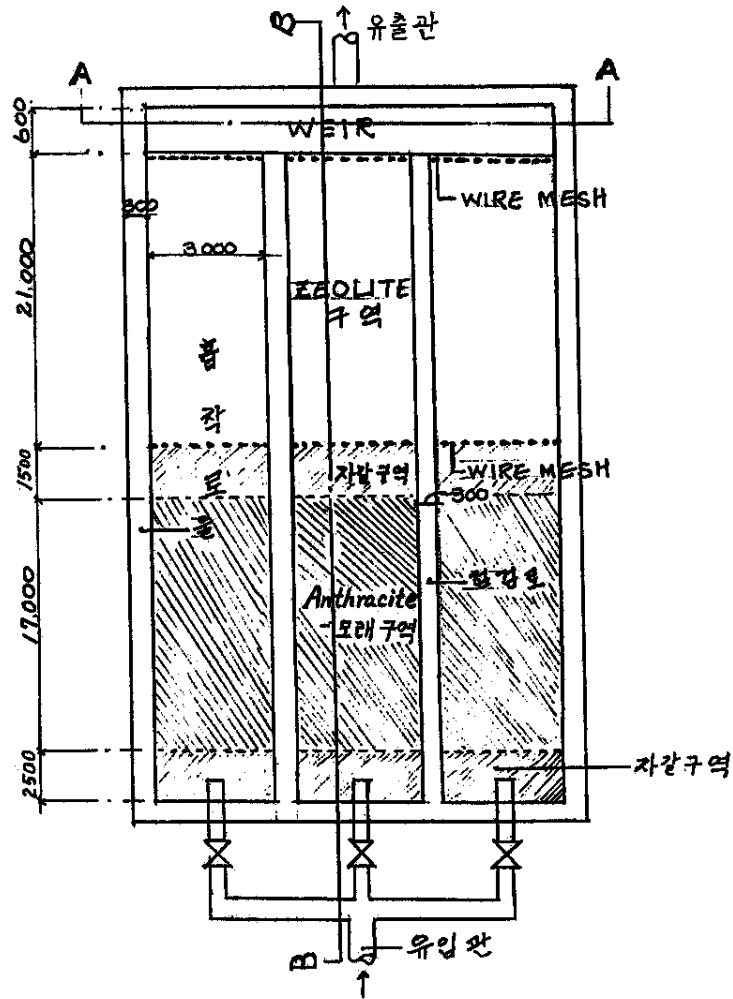


첨부 2

○ 기존 배관과의 연결 개념도

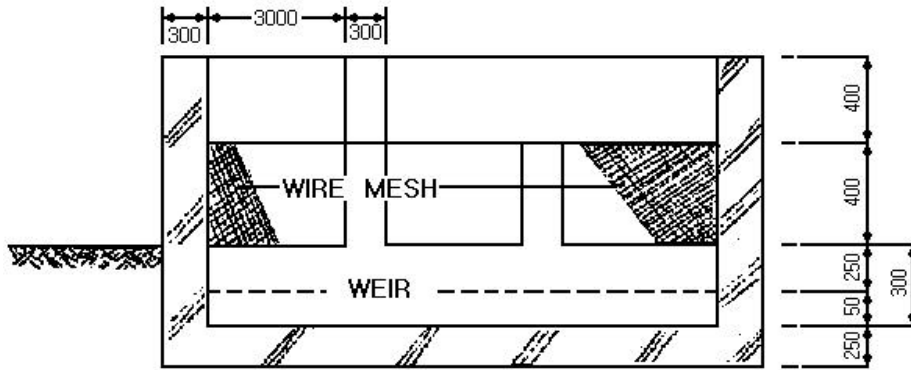


○ 구조물 평면도 (방출폐액 탱크용량 100 m³ 기준) - Non-Scale

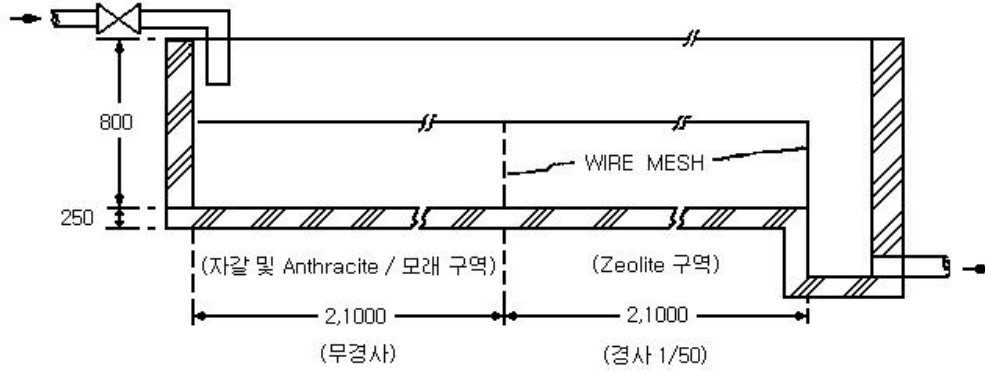


첨부 3

○ 구조물의 가로측 측면도 - Non-scale



○ 구조물의 세로측 측면도 - Non-scale



○ 흡착재 단면도 - Non-scale

