

과거발생 잡고체폐기물의 킬레이트 보수성 평가

강기두, 최광순*, 조현준

한수원(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1

*한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

kdkang@khnp.co.kr

1. 서론

국내 원전에서는 2013년까지 약 34,000 여 드럼의 중저준위 방사성폐기물을 처분할 계획이며 그 준비의 일환으로 처분시설 인도폐기물에 대한 특성평가를 수행하고 있다. 특성항목 중 킬레이트 측정의 경우 '07년 1월 이후 생성된 드럼은 방사선관리구역 유해물질관리절차에 따라 반입을 통제하고 있으므로 이를 입증하면 되나 '06년 12월 이전 발생한 드럼(과거발생 드럼)에 대해서는 유효성을 입증하기 위해 대표드럼 파괴분석 후 그 결과를 전체 모집단에 적용하는 방법을 택하고 있다.

본 논문은 교육과학기술부 고시 2008-65 중저준위 방사성폐기물 인도규정 및 지식경제부 고시 2008-228 방사성폐기물 인수방법 등에 관한 규정에 명시되어 있는 검사항목 중 하나인 킬레이트 함량에 대해 모집단 구성의 주요 가점인 종이류 잡고체의 보수성을 평가하고 확인하기 위한 것이다. 여기에는 분석이 완료된 원전본부 한 곳의 시료 12개 중 상위 4개의 분석결과를 이용하였다.

2. 과거발생드럼 킬레이트 분석

원전 잡고체 폐기물 드럼의 킬레이트 분석을 위한 폐기물 유형 분류 및 대표드럼은 보수적인 평가를 위해 종이류 잡고체 드럼으로 선정하였다. 이를 위해 대상모집단을 경상정비와 예방정비로 발생시기를 구분하여 폐기물 생성시점으로부터 4년 단위로 폐기물 유형을 분리한 후 각 폐기물 유형의 시료채취군으로부터 임의로 1개의 대표드럼을 선정한다. 현재까지 잡고체 41개, 고화체 5개 등 총 46개에 대한 시료를 선정하여 분석중에 있다.

현장 선행조사결과 킬레이트제 중 원자력발전소에서 사용된 것은 EDTA(EDDS), NTA, 구연산인 것으로 나타났다. 구연산은 기기 및 공정제염시 사용되는 제염제의 일종이고 EDTA, NTA는 세제 구성성분이다. 그림 1은 원전에서 사용되는 킬레이트제의 종류와 이들의 유입경로 및 유입 가능성이 큰 폐기물을 나타내고 있다. [1]

세제 및 제염제에 포함되어 있는 킬레이트제는 바닥제염, 기기 및 공정 제염, 세탁 폐수를 통해 폐기물로 유입된다. 바닥제염에 사용된 세제 및 제염제는 주로 제염지로 닦아내기 때문에 잡고체 종이류 드럼에 담겨지게 되고 일부는 액체폐기물처리계통(LRS)과 수치탑으로 유입되어 최종적으로 봉산폐액고화체, 슬러지, 탈수/건조 폐수지 드럼에 들어가게 된다. 기기 및 공정제염의 경우에는 기기에 묻어 있는 제염제를 제염지로 닦거나 제염에 사용된 폐액을 이온교환수치탑으로 정화하고 정화된 폐액을 LRS로 보내기 때문에 킬레이트제는 종이류 드럼, 폐수지 고화체, 탈수/건조 폐수지 드럼으로 유입되게 된다. 세탁폐수의 경우 방사능이 높을때만 LRS로 보내지기 때문에 중발기가 설치된 원전에서는 봉산폐액 고화체로 유입되고 설치되지 않은 원전에서는 폐수지 드럼으로 유입되게 된다. [1]

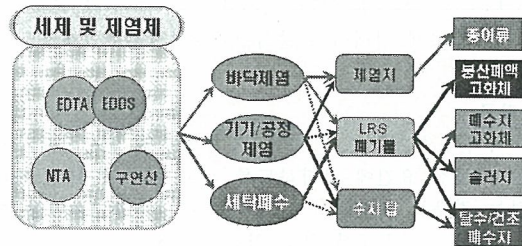


그림 1. 킬레이트 종류와 유입경로

EDTA 및 NTA 함량을 측정하기 위하여 분광광도계가 사용되었다. 지르코늄과 xylene orange(XO) 착화합물은 EDTA 또는 NTA가 공존하는 경우 Zr-XO 착화합물보다 더욱 안정한 Zr-EDTA 또는 Zr-NTA 착화합물을 형성하게 되는데 Zr-XO 착화합물의 투과도를 분광광도계로 측정함으로써 EDTA/NTA 함량을 측정하게 된다. 착화합물을 이루고 있는 EDTA/NTA 양은 다음 식을 이용하여 계산한다.

$$\text{총 Na}_4\text{EDTA} + \text{Na}_3\text{NTA}(\%) = \left\{ \left(\frac{C}{V} \right) \times \frac{1}{1,000} \times 500 \right\} / S \times 100$$

여기서 C는 시료 중의 Na₄EDTA + Na₃NTA 양(mg)을, V는 시료를 침출하고 500mℓ로 채운 후 사용한 시료 부피(mℓ)를, S는 시료의 무게(g)를 각각 나타낸다. [2]

구연산 분석은 구연산 분해 효소(citrate lyase ; CL)에 의한 전환반응, 말산 탈수소 효소(malate dehydrogenase ; L-MDH) 및 젖산 탈수소 효소(lactate dehydrogenase ; L-LDH)에 의한 L-말산 및 L-젖산으로 환원반응을 이용하여 이루어지며 UV-VIS(Varian Cary 3E)로 니코틴아미드아데닌 디뉴클레오티드(NADH) 흡광도를 측정하며, Boehringer Mannheim UV-method combination kit 시약을 사용하였다. 측정된 구연산의 양은 아래 식을 이용하여 계산한다.

$$\text{구연산 농도 (C)} = \frac{V \times MW}{k \times d \times v \times 1000} \times \Delta A \text{ (mg/ℓ)}$$

$$\text{구연산 함량}(\%) = C/S \times 100$$

여기서 V는 최종부피(mℓ), MW는 구연산의 분자량(g/mol), k는 340 nm에서 NADH의 흡광계수(ℓ /mmol·cm), d는 셀 길이(cm), v는 시료부피(mℓ), ΔA는 시료와 바탕용액의 흡광도 차이, S는 1ℓ 중 시료의 무게(g/ℓ)를 각각 나타낸다. [3]

표 1 및 그림 2는 상기 분석방법에 따라 분석된 한 원전본부의 결과를 정리한 것이다. 여기서 1차 결과는 종이류(제염지)가 다수 포함된 시료를, 2차 결과는 동일 시료에서 종이류를 제거한 시료의 분석 결과를 각각 나타낸다. 분석결과로부터 종이류를 포함한 시료가 제거한 시료에 비해 평균 4배 이상 높게 나타난 것을 알 수 있으며 이는 대표시료 선정에 있어 종이류가 포함된 모집단 구성이 가장 보수적일 것이라는 가정이 잘 맞고 있음을 입증해 주는 것이라고 할 수 있다.

드림	1차(%)			2차(%)			1차 / 2차 (배)
	EDTA/NTA	구연산	소계	EDTA/NTA	구연산	소계	
A	0.08	0.04	0.12	0.02	0.02	0.04	3
B	0.19	<0.01	0.20	0.19	0.01	0.20	1
C	0.13	0.05	0.18	<0.01	<0.01	<0.02	9
D	0.73	0.01	0.74	0.03	0.01	0.04	18.5
평균			0.31			0.07	4.4

표 1. 참고체 킬레이트 분석결과 (원전본부 1개소)

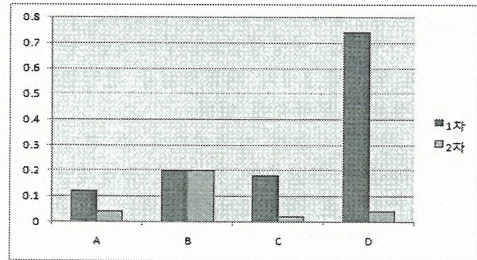


그림 2. 킬레이트 1차 및 2차 분석결과 비교

3. 결론

교육과학기술부 고시 2008-65 중저준위 방사성폐기물 인도규정에 따르면 킬레이트제를 포함하는 폐기물은 처분장 요건에 부합하도록 하고 있으며 이에 따라 처분장 안전성 분석보고서에서는 0.1% 이상 잔존하는 경우는 화학명과 존재량을 명시하고 1%이상 함유하는 폐기물은 고형화물, 8%이상 함유하는 경우 처분을 제한하도록 하고 있다. [4]

4개 원전본부에서 물리화학 특성평가를 위해 현재까지 중저준위 참고체 41개 드림을 파괴분석하였으며 킬레이트 분석이 끝난 한 원전본부의 종이류 참고체 대표드림에 대해서 그 보수성을 평가한 결과 종이류가 다량 함유된 경우 그렇지 않은 경우에 비해 킬레이트가 최고 18배, 평균 4.4배 높게 나타난 것을 확인할 수 있었다. 이는 킬레이트의 유입경로를 따라 제염지에 가장 많이 포함될 것이라는 초기의 가정을 잘 입증해 주는 것이다.

[참고문헌]

- [1] 한수원(주) 원자력 발전기술원, 처분시설 인도폐기물의 관리기술개발 (2008. 1)
- [2] 한국원자력연구원, 중저준위 방사성폐기물 착화합물 정량분석 절차 (2008. 3)
- [3] 한국원자력연구원, 중저준위 방사성폐기물 구연산 정량분석 절차 (2008. 12)
- [4] 교육과학기술부 고시, 2008-65 중저준위 방사성 폐기물 인도규정 (2008. 4)