

첨착 활성탄 실험용 Backup 필터 성능시험 결과 고찰

성기방, 권혁철, 김정미

한수원(주) 중앙연구원, 대전시 유성구 유성대로 1312번길 70

kbsung@khnp.co.kr

1. 서론

방사성요오드를 사용하거나 방사성요오드가 발생 가능한 원자력시설에서 환경 방출을 방지하기 위해 필요한 첨착활성탄의 흡착성능검사는 관련 기준인 ASTM D 3803[1]에 제시된 방사성 유기요오드 동위원소 이용법에 의하여 실시한다. 현재 국내에서의 첨착활성탄 성능시험 장치를 2008년부터 구축하여 한수원중앙연구원에서 국제공인시험기관(KOLAS) 인증을 받아 가동중 원전의 공기정화계통 첨착활성탄과 신탄의 성능검사를 수행하고 있다. 흡착성능 실험과정은 성능검사 대상의 시료를 시험 Canister에 충전한 후, 시료의 성능차이에 반대되는 누설되는 방사성요오드의 량을 후비(Backup) Canister에서 포집하여 그 량을 측정함으로서 성능을 평가하게 된다.

본 연구에서는 후비 방사능 포집용 첨착활성탄으로 사용된 신 첨착활성탄이 성능시험 시료가 증가함에 따라 다량 발생되어 재활용성을 모색하고, 첨착활성탄 실험환경조건(95% 상대습도, 30°C)에서 신활성탄의 성능저하율을 평가하였다.

2. 실험 내용

2.1 첨착활성탄의 특징

첨착활성탄은 산업용으로 사용되는 야자수열매의 활성탄에 원자력시설에서 발생 가능한 메틸요오드를 선택적으로 잘 흡수할 수 있는 TEDA(TriEyleneDiAmine)를 흡착시킨 기능성 강화된 활성탄이다. TEDA와 CH₃I의 반응은 다음과 Fig 1과 같이 표현된다.

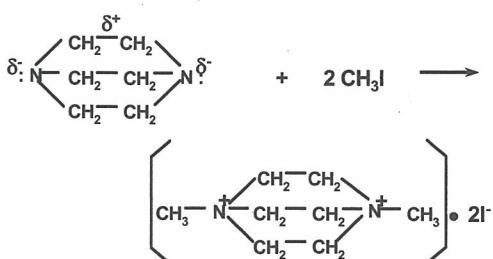


Fig. 1. Reaction Scheme of TEDA and CH₃I.

첨착활성탄의 제조공정은 1) 입상활성탄 선별, 2) 전조, 3) 일반 활성탄의 첨착수용액 첨착, 4) 건조, 5) 선별, 6) 포장 등의 순서이다. 먼저 상용 야자껍질의 일반 활성탄을 8~16 mesh로 선별하고 활성탄에 포함된 수분을 제거하기 위해서 110°C에서 전조한다. 이후 일정량의 첨착시약을 종류수에 용해시키고 첨착시약의 양은 첨착율에 따라 결정될 수 있다. 초기 일반 활성탄의 무게와 건조 후 첨착활성탄의 무게비로서 첨착율을 계산하기도 하고 비색분석법을 사용하기도 한다.

2.2 1회 실험시 메틸요오드 방사능량

메틸요오드 용액은 0°C이하의 어두운 곳에 보관하여 원소 요오드(I₂)로 분해를 최소로 하며, ASTM D 3803의 7.3항에 따라 1회 검사시 주입되는 ¹³¹I 방사능은 테스트 층 전체 스펙트럼을 검출기로 측정하였을 때 10³~5×10⁵ cpm 범위에 있어야 한다.

아래의 표에서 보는 바와 같이, NaI 검출기 효율을 8%로 가정할 경우 1회 주입시 총 방사능은 0.006~3 μCi 범위내이며, 보통 1~2 μCi로 실험하는 것이 데이터의 신뢰도 측면에서 가장 좋다.

Table 1. Range of Methyl Iodide Usage Activity.

CPM(ASTM 기준)	1.00E+03	5.00E+05
CPS	1.67E+01	8.33E+03
NaI Detectror 효율. (%)	8.00	8.00
Dps	2.08E+02	1.04E+05
Ci	5.63063E-09	2.81532E-06
μCi	5.63E-03	2.82E+00

2.3 Backup 활성탄 규격 및 잔류 방사능량

ASTM D 3803의 7.4항(Backup Bed Carbon)에서는 Backup 활성탄의 메틸요오드 최소투과 성능규격을 3% 이하로 규정하고 있다. Backup 층 활성탄 투과율이 3% 정도일 경우, 첫 번째 Backup 층의 효율 계산이 각 테스트별로 필요하다. 즉 두 개 Backup 층내에 사용하는 활성탄의 메틸요오드 흡착효율은 실험전에 알고 있어야 하므로, 첫 번째 Backup 층의 흡착효율을 기준으로 두 번째 Backup 층으로 투과되는 메틸요오드를 전량 흡착할 수 있는지를 계산하여야 한다. Backup 층 활성탄 흡착효

율이 97%라면, 첫 번째 Backup 층은 3% 투과 가능하고 두 번째 Backup 층에 유입되는 양도 3% 이므로 두 번째 Backup 층은 $3\% \times 3\% = 0.09\%$ 투과 가능, 즉 99.91%는 Backup 층에 잔류하며, 투과하는 메틸요오드는 0.09%로 약 0.1% 수준이다.

첨착활성탄 성능시험시 대상시료의 성능이 우수하면 Backup 층으로 메틸요오드 방사능이 적게 포집되고, 성능이 떨어지면 더 많이 포집된다. 잔류 방사능량을 계산하기 위하여 시간의 경과에 따른 잔류 방사능량을 아래식을 이용하여 이론적으로 계산해 보았다. 시험에 사용된 방사능량 보수적으로 5×10^5 cpm 이고, 사용된 활성탄의 흡착효율은 97%로 하였다.

$$\text{Activity (cpm)} = [X] \exp(-\ln 2/T_{1/2} * T)$$

Table 2. Decayed Activity of Used Beds.

Bed	효율 (%)	방사능 (cpm)	4개월 후 방사능(cpm)
Test Bed	97%	485,000	15.6
Backup 1 Bed	97%	14,550	0.5
Backup 2 Bed	97%	450	0.0
Total	-	500,000	16.1

2.4 첨착활성탄 성능 시험방법

- 1) 메스릴린더를 사용하여 검사대상 시료(TB) 및 Backup 시료(BB)를 각각 100 mL 준비한다.
- 2) TB의 Background를 계측한다. (감마핵종분석기)
- 3) TB, BB 활성탄을 첨착활성탄 성능검사장치에 장착한다.
- 4) 첨착활성탄 성능검사장치의 안정화 상태를 확인 후, 전처리 운전(Pre-equilibration)을 실시한다. (16 시간, 30°C, 95% 상대습도)
- 5) 평형 운전(Equilibration)을 실시한다. (2 시간, 30 °C, 95 % 상대습도)
- 6) 흡착 운전(Challenge)을 실시한다.(1시간, 30°C, 95% 상대습도)
- 7) 탈착 운전(Elution)을 실시한다. (1시간, 30°C, 95% 상대습도)
- 8) TB, BB1, BB2 활성탄을 첨착활성탄 성능검사장치에서 분리한 후 감마핵종분석기를 사용하여 ^{131}I 을 각각 계측한다.
- 9) ASTM D 3803-91 의 방법을 사용하여 TB의 흡착효율, 투과율, 표준편차를 계산한다.

3. 실험 결과

3.1 재시험 시료 사양 및 시험조건

실험대상 시료는 새수지와 동일하나 한번 첨착활

성탄 성능시험시 후단(BB1 및 BB2)에 20시간 사용된 활성탄을 이용하였다.

첨착활성탄 성능시험을 위해 20시간 사용하였으며, 본 시험을 위해 다시 18시간 사용하여 총 38시간을 사용한 것이다.

3.2 재사용 활성탄 성능시험결과

한번 Backup에 사용된 첨착활성탄 시료의 성능은 99.57%이며, 이는 새 시료의 성능인 99.90%보다 0.33% 성능이 저하되었다.

새 수지의 성능 저하가 시간에 비례한다고 가정할 때 성능저하율은 약 0.0113%/hr으로 감소하였다. 즉, ASTM D 3803 시험환경에서 첨착활성탄은 약 88시간을 사용할 경우 1% 정도의 성능저하가 예상된다. 성능저하의 근본이유는 한번 실험 할 때마다 95%의 습도에서 32 lpm의 공기로 20시간동안 계속 흘려주기 때문에 습기와 공기가 첨착활성탄에 침착된 TEDA를 계속 밀어내기 때문으로 보인다.

Table 3. Result of Used Beds Efficiency.

Bed	방사능계수 (count)	측정시간(sec)	방사능 (cpm)
Test Bed	22,030	300	4,408
Backup 1 Bed	1,130	3,600	19.0
Backup 2 Bed	0	3,600	0
효율(%)			99.570±0.013

4. 결론

재사용 활성탄의 성능시험 결과, 즉 CH_3I 제거율은 새활성탄 수준인 99.57 %를 보였다.

99.57%의 제거 성능은 여전히 Backup 첨착활성탄의 성능을 만족하고 있고, ASTM D 3803의 성능기준인 97%를 충분히 만족하고 있어서 재사용도 가능하다.

현재 국내에서는 매년 400 여건의 첨착활성탄 성능시험이 이루어지고 있다. 이로 인하여 총 800 개 정도의 사용후 첨착활성탄이 발생(약 1,000리터)하며, 이 시료를 3개월 이상동안 방사능 붕괴 할 수 있도록 충분한 기간동안 보관하고 있다. 따라서 본 실험결과를 근거로 첨착활성탄의 Backup 필터는 일부 재활용하고 있다.

5. 참고문현

- [1] ASTM D-3803-91(2009) Standard Test Method for Nuclear-Grade Activated Carbon.