

방사성 HEPA 필터 매체의 열적 처리시 중금속과 방사성 핵종의 휘발성과 침출 특성 연구

윤인호, 최왕규, 이석철, 양희철, 민병연, 이근우, 문제권
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 대덕대로 989번길 111
nwkchoi@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력연구원 내 연구시설(연구용 원자로, 우라늄 변화시설, 조사후 시험시설, 조사제시험시설 등)에서 약 1500드림의 HEPA 필터가 발생되어 방사성 폐기물로 저장되어 있다. 가동 중인 원전 10기에서는 연간 약 1,700 드림 (약 3,400개), 한전원자력연료주식회사(KNF)에서는 최소 연간 50 드림의 폐 HEPA 필터가 발생되고 있다. 특히 사용후 핵연료를 취급한 DFDF (Dupic Fuel Demonstration Facility)와 20년 이상 가동된 조사후시험 시설의 공정 내 HEPA 필터는 사용 후 핵연료 물질에 의해 고방사성 물질로 오염되어 발생하고 있다[1-2]. 또한 향후 파이로 프로세싱 연구시설 등에서도 고방사성 HEPA 필터 폐기물이 다량으로 발생할 것으로 예상된다. 따라서 국내 핵연료주기 연구개발을 통해 발생하는 폐기물 관리에 대한 효율성 및 안전성을 위해 HEPA 필터 폐기물 처리기술 개발이 요구되고 있다. 본 논문에서는 HEPA 필터 폐기물의 저준위화 및 감용기술개발 일환으로 HEPA 필터 폐기물의 열적 처리시 중금속과 방사성 핵종의 휘발성 평가 및 침출 특성에 대한 연구를 수행하였다.

2. 본론

원자력연구원에서 채취한 방사성 HEPA 필터 매체를 실제 HEPA 필터 매체 규모의 1/10을 처리할 수 있는 Graphite crucible에 넣어서 최적 조건인 900°C에서 2시간 동안 고온 용융 처리를 적용하였다. 초기 무게는 154 g이었고, 초기 부피는 1380 cm³ 으로 나타났다. 고온 용융 처리 이후 무게는 137g이었고, 부피는 40 cm³으로 나타났고, 부피 감용비는 34로 현저하게 감소된 것으로 나타났다. 그리고 무게 감중비는 11%로 이는 HEPA 필터 매체에 포함되어 있는 휘발성 물질 또는 유기물, 먼지 등이 휘발 되어 무게가 감소된 것으로 사료된다.

고온 용융 처리 전후의 HEPA 필터 매체를 완전히 추출하여, HEPA 필터 매체에 주로 오염되어 있는 Zn와 Pb, Sr, Cr의 농도를 ICP와 AA를 이용하여 분석하였다. 분석결과, HEPA 필터 매체에 존재하는 약 22 µg/mg Zn와 0.613 µg/mg Sr, 0.245 µg/mg Cr, 0156 µg/mg Pb의 중금속 양은 고온 용융 처리 전후 차이가 없는 것으로 나타났다(Fig. 1). 또한 Cs-137도 고온 용융 처리 전후에 휘발이 일어나지 않는 것으로 나타났다.

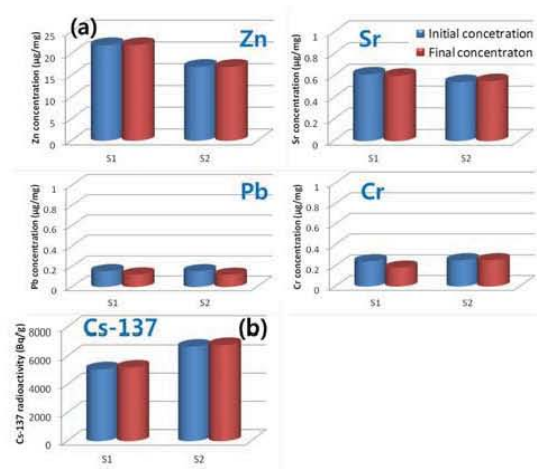


Fig. 1. Concentration of (a) heavy metals and (b) radionuclides in radioactive HEPA filter media before and after thermal treatment.

고온 용융 처리 이후의 고화체의 안정성을 평가하기 위해 침출 특성 평가를 실시하였다. 고온 용융 처리한 샘플을 곱게 갈아 100-200 mesh 체로 걸러 물과 에탄올로 세척한 후 건조하여 2차 증류수를 사용하여 7일 동안 PCT 실험을 진행하였다. 분석대상 원소의 종류는 고화체 주요 구성성분 4종 (B, Li, Na, Si)과 중금속 4종 (Zn, Pb, Sr, Cr)와 방사성 핵종 2종 (Co, Cs)의 침출특성을 평가하였다. 고화매질(B, Li, Na, Si)의 침출속도는 $4.5 \times 10^{-2} \sim 3.0 \times 10^{-1} \text{ g/m}^2$ 범위에 존재함을 알 수 있었고, Li는 검출되지 않았다. HEPA 필터 매체의 중금속 침

출속도는 $2.8 \times 10^{-3} \sim 6.1 \times 10^{-2} \text{ g/m}^2$ 범위에 존재함을 알 수 있었고, Pb와 Cr은 검출되지 않았다. HEPA 필터 매체의 방사성 핵종인 Cs와 Co는 전혀 검출되지 않았다 (Fig.2).

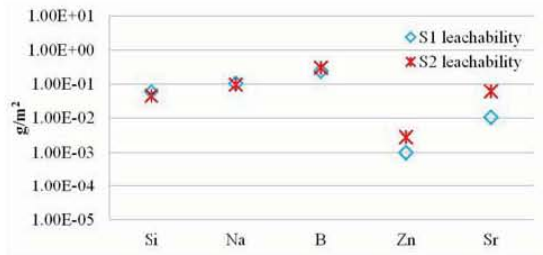


Fig. 2. PCT tests for the leachability of heavy metals and radionuclides.

7일 PCT 침출시험 수행 결과 각 시험체의 주요 원소별 침출율은 미국 내에서 규제하고 있는 주요 원소의 기준치와 비교하였으며 Savannah River Laboratory(SRL)에서 제조한 기준유리인 SRL-EA (Environmental Assessment) 유리고화체와 비교한 결과 기준유리(Benchmark glass: SRL-EA)의 침출을 보다 낮고 미국 Hanford 유리고화체 규제치 2 g/m^2 보다 훨씬 낮은 결과를 보여 국제적인 유리고화체 기준치들을 모두 만족하므로 화학적 내구성이 우수함을 알 수 있었다.

HEPA 필터 매체와 중금속과 방사성 핵종의 반응기작을 조사하기 위해 XRD 분석을 실시하였다. 시료는 휘발성 실험에서 주요 중금속인 ZnO와 SrO, 주요 핵종인 CsNO₃(surrogate)를 각각 10 wt.%로 넣은 샘플을 오염되지 않은 HEPA 필터 매체와 열적처리를 한후 XRD를 통해 결정 형성을 분석하였다.

Zn와 반응한 HEPA 필터 매체는 Fig. 3에 나타난 것처럼 Willemite(ZnO·SiO₂)와 ZnO의 피크가 주로 나타났다. 이는 ZnO와 HEPA 필터 매체의 주성분인 SiO₂가 반응하여 Willemite(ZnO·SiO₂)의 안정한 형태가 형성되고, SiO₂와 반응하지 못한 ZnO가 그대로 분석된 것으로 사료된다. Cs과 반응한 HEPA 필터 매체는 Fig. 3에 나타난 것처럼, Pollucite (CsAlSi₂O₆) 결정이 형성된 것으로 나타났다. 이는 Cs이 HEPA 필터 매체의 주성분인 SiO₂, Al₂O₃와 반응하여 Pollucite (CsAlSi₂O₆)의 결정으로 형성되어 휘발성과 침출성이 낮은 것으로 사료된다.

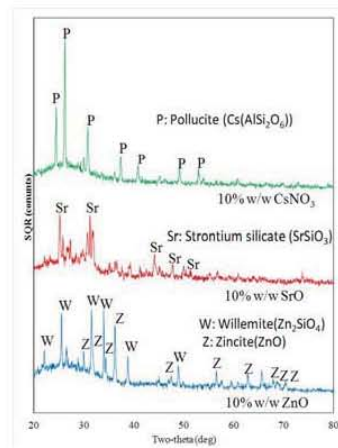


Fig. 3. XRD data for HEPA filter media reacted with ZnO, SrO and CsNO₃ by thermal treatment.

3. 결론

고온 용융 처리를 통해 방사성 HEPA 필터 폐기물의 부피를 감용하여 경제적 비용을 줄일 수 있을 것으로 나타났다. 또한 열적 처리에서 문제가 되었던 Cs의 휘발이 일어나지 않는 안정한 공정인 것으로 나타났는데, 이는 XRD 분석을 통해 Cs이 HEPA 필터 매체와 반응하여 Pollucite를 형성하여, 안정하게 존재하는 것으로 나타났다. 또한 PCT 실험결과를 통해 중금속과 방사성 핵종이 외부로 유출이 낮은 안정한 고화체를 형성하는 것으로 나타났다.

4. 감사의 글

본 논문은 2012년도 교육과학기술부의 한국과학기술연구원 원자력 연구개발 사업의 지원으로 수행되었다.

5. 참고문헌

[1] Ji, Y.-Y., Hong, D.S., Kang, I.-S., Shon, J.-S., Current status of the filter waste and consideration of its treatment method in KAERI (2007) J. of the Korean Radioactive Waste Society. 5(3), 257-266.

[2] Kim, G.-N., Lee, S.-C., Shon, D.-B., Park, H.-M., Choi, W.-K., Moon, J.-K. Development of a method for nuclide leaching from glass fiber in HEPA filter (2011) J. Radioanal. Nucl. Chem. 289(1), 121-128.