

## 완충재 첨가제에 의한 용액중 요오드 농도의 감소

김승수, 전관식, 최종원, 한필수

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

사용후핵연료를 재처리없이 직접 처분할 경우 연료봉을 담고 있는 금속용기의 수명을 1000년으로 가정하면 이 기간이 경과한 후 핵연료로부터 완충재 층을 통하여 유출되는 핵종 중 I-129가 위해도가 가장 큰 핵종으로 예상된다. 따라서 이 I-129의 이동을 자연시키기 위하여 금속용기의 부식 생성물, 요오드 흡착광물 및 용해도가 작은 요오드 첨전물을 형성할 수 있는 물질을 벤토나이트에 첨가하여 용액중 요오드 농도 감소를 검토했다.

금속용기의 부식물로서 철, 구리 니켈의 산화물 및 황화물과, 요오드 흡착물질로 알려진 활동석, 황철석, 동광석, 고령토, 방연광과 활성탄, 그리고 요오드와 반응하여 용해도가 낮은 첨전을 형성하는 은, 몰리브덴, 텉스텐 산화물을 첨가제로 사용하였다. 이 첨가제 각각을 벤토나이트와 요오드를 포함한 모의 지하수(pH=9.5)에 넣고, 4주동안 상온에서 교반시킨 다음 여과하여 용액중 요오드 농도를 측정함으로서 표 1을 얻었다.

처분용기 재질의 철과 그 부식생성물들은 요오드를 거의 흡착하지 못했으나, Cu와 CuS의 경우는 용액중 요오드의 농도가 1/2로 감소하였다. 그러나 실제 고성지역 지하수를 사용하여 질소분위기에서 흡착시험한 결과 산화분위기와 달리 요오드가 거의 흡착되지 않았다. 요오드를 잘 흡착하는 것으로 알려져 있는 위의 첨가 광물들은 활성탄을 제외하고 요오드를 거의 흡착하지 못하였다. 그러나 Ag<sub>2</sub>O의 경우는 이를 0.3 mg 첨가하여도 0.12 mg의 요오드를 흡착시켜 용액중 요오드가 거의 검출되지 않았다. 이는 AgI의 용해도가 25, 60°C 중류수에서 각각  $2.8 \times 10^{-8}$ ,  $2.5 \times 10^{-7}$  g/L로 매우 낮기 때문이다. MoI<sub>2</sub>와 WI<sub>2</sub>의 경우도 냉수에서 용해도가 작은 것으로 알려져 있으나, MoO<sub>3</sub>와 WO<sub>3</sub>가 요오드와 반응하지 않았으며, MoI<sub>2</sub>와 WI<sub>2</sub>가 열수에서 분해되는 경향이 있는 것으로 알려져 있다. 국내 금광산의 찌꺼기인 광미중 약 50 μg/g을 함유한 광미 1g을 요오드 용액에 첨가하였을 경우 벤토나이트가 없는 조건에서 용액중 요오드가 약 15 μg이 제거되었는데, 완충재의 첨가물로 사용하려면 보다 많은 양의 은을 함유한 광미를 사용하여야 할 것이다.

본 시험으로부터 철과 구리의 금속용기재질에 의한 요오드의 흡착은 기대하기 어렵고, 심부처분환경에서 I-129의 이동을 자연시키기 위해서 벤토나이트에 첨가 가능한 물질로는 은화합물과 활성탄 뿐으로 판단된다.

표 1. 벤토나이트 첨가제에 의한 요오드의 흡착실험 결과

| 첨가제                    | 첨가제<br>무게 (g)                  | 벤토나이트<br>(g)         | 용액중<br>초기농도<br>(mg/L) | 실험후<br>용액농도<br>(mg/L) | Kd<br>(ml/g)           | 흡착량<br>( $\mu$ g)   |
|------------------------|--------------------------------|----------------------|-----------------------|-----------------------|------------------------|---------------------|
| -                      | -                              | 1                    | 9.09                  | 8.8                   |                        |                     |
| 금속용기<br>재질 및<br>부식 생성물 | Fe                             | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 8.9                    |                     |
|                        | Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 9.5                    |                     |
|                        | Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 9.4                    |                     |
|                        | Fe(OH) <sub>3</sub>            | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 9.3                    |                     |
|                        | Cu                             | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 5.5 (9.9) <sup>a</sup> | 108                 |
|                        | CuO                            | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 9.9                    |                     |
|                        | Cu <sub>2</sub> O              | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 9.2                    |                     |
|                        | CuS                            | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 4.3 (9.0) <sup>a</sup> | 184                 |
|                        | Cu <sub>2</sub> S              | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 9.9                    |                     |
|                        | Cu(OH) <sub>2</sub>            | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 9.0                    |                     |
|                        | CuCl                           | 0.1                  | 1                     | 9.09                  |                        |                     |
|                        | NiO                            | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 9.9                    |                     |
| 광물                     | 황동석                            | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 8.9                    |                     |
|                        | 황철석                            | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 9.0                    |                     |
|                        | 동광석                            | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 8.7                    |                     |
|                        | 고령토                            | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 8.8                    |                     |
|                        | 방연광                            | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 7.4                    | 40                  |
| 온산화물 및<br>온광석          | Ag <sub>2</sub> O              | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | <0.01                  |                     |
|                        |                                | 7.6x10 <sup>-3</sup> | 1                     | 9.09                  | 0.04                   | 4.9x10 <sup>5</sup> |
|                        |                                | 1.2x10 <sup>-3</sup> | 1                     | 9.09                  | 0.07                   | 1.8x10 <sup>6</sup> |
|                        |                                | 3x10 <sup>-4</sup>   | 1                     | 9.09                  | 0.8                    | 5.7x10 <sup>5</sup> |
|                        | 순신원광                           | 1                    | -                     | 1                     | 0.92                   |                     |
|                        | 광미1 <sup>b</sup>               | 1                    | -                     | 2.5                   | 1.55                   | 14.3                |
|                        | 광미2 <sup>b</sup>               | 1                    | -                     | 1                     | 0.46                   | 8.1                 |
| 기타                     | 활성탄                            | 1                    | 5                     | 9.90                  | 1.8                    | 136                 |
|                        | MoO <sub>3</sub>               | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 9.0                    |                     |
|                        | WO <sub>3</sub>                | 0.1                  | 1                     | 9.09                  | 9.0                    |                     |

<sup>a</sup>Real groundwater was used for this test in a nitrogen-filled glovebox.<sup>b</sup>광미1 and 광미2 contain about 50  $\mu$ g/g of silver.