

방사성 아이오딘을 흡착한 AgX의 유리화 가능성 연구

양재환, 신진명, 박장진, 김영자, 이영순, 이도연, 박근일

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 989번길 111

yjh98@kaeri.re.kr

1. 서론

전식 공정을 이용하여 사용후핵연료를 재활용하는 파이로 프로세스 기술은 일련의 전기화학적 방법을 통해 소듐냉각고속로에 이용되는 금속우라늄을 생산하는 것을 특징으로 한다. 사용후핵연료에는 각종 핵분열생성물이 방사성 물질로서 포함되어 있기 때문에 이를 제거하지 않은 채 전기화학적 처리를 하면 다량의 염폐기물이 발생한다. 따라서 전처리 공정에서 대부분의 핵분열생성물을 기계로 휘발시키는 작업을 거치게 되고, 이 과정에서 발생하는 배기체들은 다공성의 세라믹 필터에 흡착된다. 이 중 I-129 (반감기 : 1.6×10^7 년)와 Tc-99 (반감기 : 2.1×10^5 년)와 같은 장반감기의 방사성 핵종을 포함한 필터에 대해서는 더욱 신뢰성과 안정성이 입증된 폐기물 관리기술이 요구된다.

아이오딘 포집 폐기물을 처분장에 저장될 수 있는 고화체로 제작하는 기술은 아이오딘을 포집하는 매질의 물리·화학적 성질에 크게 의존할 수밖에 없다. 사용후핵연료의 재처리 과정에서 발생하는 아이오딘 배기체를 제거하는 방식은 크게 NaOH나 HNO₃ 등의 scrub 용액을 이용하는 습식 스크리빙 방식과 황성탄, 수지, 은 침착 또는 은 교환 형태의 제올라이트 등을 사용하는 고체 흡착제 방식으로 나뉜다. 이 중 공학적인 관점에서 판단할 때, 고체 흡착제 방식이 습식 스크리빙 방식에 비해 설비가 간편하고 관리가 용이하며, 아이오딘 제거 효율이 더 높다는 장점을 지닌다[1]. 이런 연유로 현재 재처리 시설에서 아이오딘 배기체를 제거할 때 고체 흡착제 방식이 선호되고 있고, 그 중에서도 제올라이트의 일종인 은 교환 모데나이트 (mordenite, AgZ)가 가장 널리 사용되고 있다. 그러나 아이오딘 흡착효율 및 흡착량 측면에서 AgZ를 능가하는 우수한 물질을 개발하려는 노력은 지속되고 있으며, Pacific Northwest National Laboratory (PNNL)에서 연구 중인 Ag-functionalized silica aerogel과

chalcogen-based aerogel (chalcogel)이 거기에 해당하는 물질이라 할 수 있다[2].

아이오딘을 포집한 AgZ를 처분장에 저장될 수 있는 고화체 형태로 제조하기 위한 연구는 저온 용융 유리 또는 유리-복합물 (glass composite materials), 시멘트 고화체, 그리고 실리콘 지오폴리머 제조의 세 가지 방향으로 진행되고 있다[2]. 저온 용융 유리와 관련하여 미국의 Sandia National Laboratory (SNL)에서는 비스무스 계열의 유리를 이용하여 아이오딘을 포집한 모데나이트를 550 °C에서 1시간 동안 소결하여 유리-복합물을 제조하였고, 고화체에 대한 PCT 침출시험을 통해 2.3 ppm 이하의 아이오딘 침출 농도를 얻었다[3].

냉전시대 핵무기 연구개발 과정에서 발생한 다량의 방사성 폐기물이 미국 Hanford site의 저장 탱크에 저장되어 있는데, 이는 유리를 이용하여 고화체로 제작할 예정이며, 이 과정에서 배기체로 발생하는 I-129 및 Tc-99는 scrubber solution을 이용하여 포집한다. I-129를 포집한 solution을 처리하기 위하여 미국의 Pacific Northwest National Laboratory (PNNL)을 중심으로 cast stone, phosphate ceramics, geopolymers 등의 다양한 고화체가 연구되고 있다[4]. PNNL에서 개발 중인 고화체는 대체로 저온 또는 상온에서의 수화반응을 이용한 일종의 시멘트 물질로서 조업공정이 단순하고 원료물질이 저렴하여 경제성 측면에서 장점을 지닌 고화체라 할 수 있다. 그러나 고온 열처리 과정을 거치지 않아서 기계적 화학적 안정성이 다른 고화체에 비해 취약할 수 있으므로 이에 대한 심도 있고 철저한 조사와 검증이 요구된다.

본 연구의 최종 목표는 아이오딘을 포집한 AgX를 이용하여 장기간 기계적·화학적 안정성이 유지될 수 있는 고화체를 개발하는 것이다. 현 시점 단계에서는 비스무스 계열의 유리를 제조하고, 이를 이용하여 AgX 및 AgI를 포함한 유리 또는 유리-복합물을 온도에 따라 제조하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

비스무스 계열의 유리 제조를 위한 시작물질로서 Bi_2O_3 , ZnO , $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ 분말을 각각 14.8 g, 3.4 g, 31.7 g 사용하여 몰비로 Bi_2O_3 : ZnO : P_2O_5 = 15:20:65 인 50 g의 유리를 만들려고 하였다. 각 분말을 정량대로 준비한 뒤 막자사발에 넣고 막자로 갈며 고르게 혼합하였다. 혼합분말을 graphite 도가니 2 개에 25 g 씩 넣고 뚜껑을 닫은 후 열처리로에 넣고 N_2 분위기를 조성한 뒤 400 °C에서 2시간, 1200 °C에서 1시간 동안 가열하여 유리를 제조하였다. 제조된 유리로 AgI 및 AgX를 포함한 고화체를 만들기 위해 유리를 막자로 갈아 분말화한 뒤 유리 분말에 AgI 및 AgX를 각각 2.5 g 및 2 g씩 혼합하여 50 °C 간격으로 600 ~ 700 °C에서 2시간 동안 열처리를 하였다.

2.2 실험결과

그림 1은 제조된 비스무스 유리를 나타낸 사진이다. 육안으로 관찰할 때 표면이 매끄럽고 상분리가 일어나지 않은 것으로 판단되며, 이를 통해 본 실험에서 사용된 유리조성이 비결정질의 유리를 만든데 문제가 없다고 보여진다. 그림 2는 각 온도별로 비스무스 유리에 AgI와 AgX를 섞어 만든 물질의 표면을 보여준다. AgI를 섞고 열처리했을 때 600도 이상에서 대체로 매끄러운 표면의 유리 형상이 나타나는 것을 확인할 수 있었다. 반면 AgX를 섞은 경우에는 그림에서 볼 수 있는 것처럼 유리화가 일어나지 않은 것으로 판단된다. 이것은 AgX와 비스무스 계열 유리 성분 사이에 상용성 (compatibility)이 크지 않다는 것을 의미한다. 따라서 AgX를 유리화하기 위해서는 현 실험에서 사용한 유리조성이 아닌 다른 유리조성을 사용해야 할 것이다.



Fig. 1. Surface of glass with composition of Bi_2O_3 - ZnO - P_2O_5 .

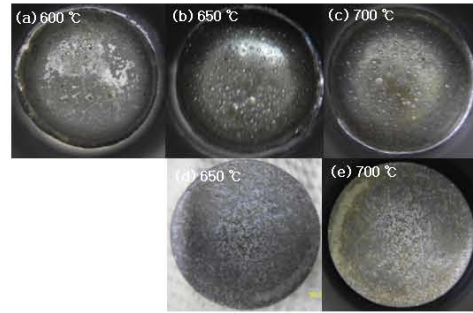


Fig. 2. Surfaces of heat-treated (AgI+bismuth glass) ((a)-(c)) and heat-treated (AgX+bismuth glass) ((d)-(e)).

3. 참고문헌

- [1] D.R. Haefner and T.J. Tranter, "Methods of Gas Phase Capture of Iodine from Fuel Reprocessing Off-Gas: A Literature Survey, Idaho National Laboratory, INL/EXT-07-12299 (2007).
- [2] B. J. Riley et al, "Chalcogen-Based Aerogels as a Multifunctional Platform for Remediation of Radioactive Iodine", RSC Advances, 1, pp. 1704 - 1715 (2011).
- [3] T. J. Garino et al, "Low-Temperature Sintering Bi-Si-Zn-Oxide Glasses for Use in Either Glass Composite Materials or Core/Shell 129I Waste Forms", J. Am. Ceram. Soc., 94, pp. 2412-2419 (2011).
- [4] E. M. Pierce et al., "Review of Potential Candidate Stabilization Technologies for Liquid and Solid Secondary Waste Streams", Pacific Northwest National Laboratory, PNNL-19122 (2010).