

방사성 오염 토양의 Cs 탈착 방안 설정에 관한 연구

이근우*, 박찬우, 양희만, 서범경

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*nkwlee@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 시설의 해체가 완료된 부지를 재이용하기 위해서는 오염된 부지의 토양을 복원하여 개방기준을 만족하여야 한다. 방사성 핵종들은 주로 토양에 존재하는 2 μm 이하의 점토성분들에 고농도로 흡착된다. 특히, 방사성 핵종 중 Cs-137은 다른 방사성 핵종들과는 달리 점토광물의 frayed edge site나 interlayer에 선택적으로 흡착되며, 이는 흡착 안정성이 높아 일반적인 토양 정화법으로는 제거가 되지 않는다.

일본 후쿠시마 사고 이후 발생한 오염 토양 중 1억 m^3 이 제염이 필요할 것으로 예상되면서, 점토 광물들(vermiculite, illite, smectite 등)의 Cs에 대한 선택적 흡착의 기작연구 뿐 아니라, Cs의 탈착 및 제거를 위해 많은 연구가 시도되고 있다. 점토 층간에 흡착된 Cs의 제거 연구로는 양이온 교환에 의한 탈착이 주로 연구 되었지만, 선택적으로 흡착된 Cs에 대해서는 매우 낮은 제거율을 나타낸다. 또한 열처리방법으로 1000 $^{\circ}\text{C}$ 이상의 고온에서 Cs을 증발 및 제거하는 기술로 실험실 규모의 연구가 수행되었다. 그러나 이 기술은 높은 제거율을 나타내지만 대용량의 토양 처리를 위해서는 안정성 유지가 어렵고, 에너지 소모가 많으며 발생한 재의 처리 등의 문제점이 있다. 따라서 점토광물에 선택적으로 흡착된 Cs을 경제적이고 효율적으로 제거할 수 있는 토양 처리기술 개발이 필요하다.

본 연구에서는 점토 광물에 오염된 Cs의 탈착기술을 개발하기 위해서 점토 광물의 층간을 확장 및 변형시켜 Cs 제거가 용이한 점토처리 방안 설정을 위한 연구를 수행하였다. 점토의 층간 확장(intercalation)을 위해서 계면활성제와 유기고분자에 의한 층간 확장 특성을 비교하였고, NH_4^+ , K^+ 및 Cs^+ 이온에 의한 비방사성 및 방사성 Cs 이온의 탈착 성능을 분석 평가하였다.

2. 본론

2.1 실험

2.1.1 Cs 오염 점토 제조

벤토나이트(σ)와 Ca-몬모릴로나이트를 Cs

수용액에 분산시킨 후 1주일 동안 교반시키고, 원심분리를 통해 고/액 분리하였다. 분리된 벤토나이트는 상온에서 건조하였고, 액체 내 Cs의 농도를 ICP-MS로 분석하여 점토에 흡착된 Cs의 양을 계산하였다.

2.1.2 점토 층간 삽입 및 Cs 제거

Cs 오염 점토를 양이온성 계면활성제(dodecyl trimethyl ammonium bromide, DTAB)와 유기고분자(polyamine)용액에 각각 분산시킨 후 80 $^{\circ}\text{C}$ 에서 일정시간 교반하였다. 분산액을 상온으로 식힌 후 양이온(NH_4^+ 또는 K^+)을 넣고 상온에서 교반하였다. 원심분리를 통해 고/액 분리 후 증류수로 2회 세척하였고, ICP-MS 분석을 통해 탈착된 Cs의 양을 분석하였다.

2.2 결과 및 토의

2.2.1 계면활성제의 층간삽입

양이온성 계면활성제 DTAB의 처리 후, DTAB의 벤토나이트 층간 삽입을 FT-IR과 XRD로 분석하였다(Fig. 1). FT-IR 분석 결과, DTAB의 처리 후 점토에서 DTAB의 알킬그룹에 의한 특성 피크($\nu(\text{C-H})$)가 2800~300 cm^{-1} 에서 나타났고, 이는 점토에 DTAB이 흡착되어 있음을 보여준다.

흡착된 DTAB이 벤토나이트의 층간거리에 영향을 주었는지 확인하기 위하여 XRD분석을 통해 건조된 벤토나이트의 층간거리를 측정하였다. 양이온 계면활성제 처리 후, 12.5 nm의 층간거리가 16.0 nm로 확장되는 것을 확인하였고 (Fig. 1b), 이는 DTAB이 점토 층간 내부로 삽입되었음을 보여준다.

2.2.2. Cs 제거 평가

DTAB의 삽입에 의한 층상구조의 변화에 따른 Cs의 탈착 효과를 분석하였다. 암모늄이온을 이용한 양이온교환법은 38%의 Cs제거율을 나타냈다. DTAB의 벤토나이트 층간 삽입과정에서 제거되는 Cs의 양은 8% 정도였다. 하지만 DTAB으로 층간 거리를 확장시킨 후 암모늄이온을 처리한 경우 60%의 Cs이 제거되었고, 이는 층간거리의 확장이

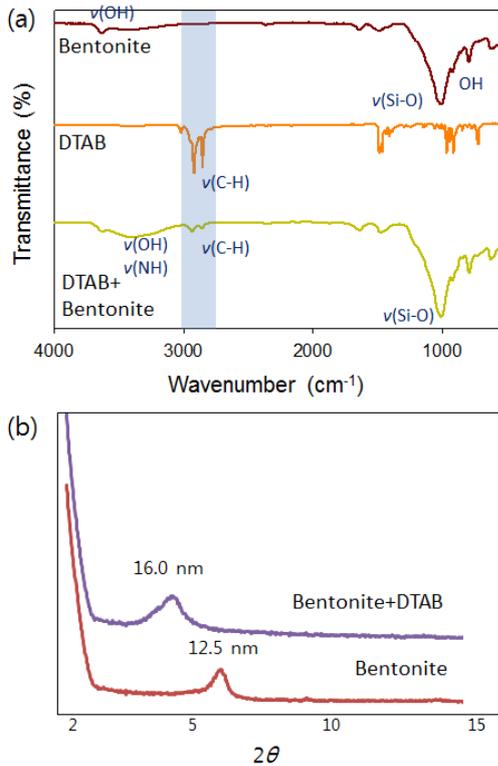


Fig. 1. (a) FT-IR spectra of pure bentonite and DTAB intercalated bentonite (b) Interlayer thickness analysis of bentonite by XRD after DTAB intercalation.

암모늄이온에 의한 Cs제거를 향상시키는 것을 증명한다. 양이온성 polyamine을 처리한 경우 80% 이상의 높은 제거효율을 보여주었다.

2.2.3. 방사성 핵종(Cs-137) 제거

점토내 Cs-137의 제거 성능을 평가하기 위해서 점토(몬모릴로나이트)에 3×10^{-4} μCi Cs-137을 오염시켜 시료를 제조한 후 계면활성제 및 유기고분자

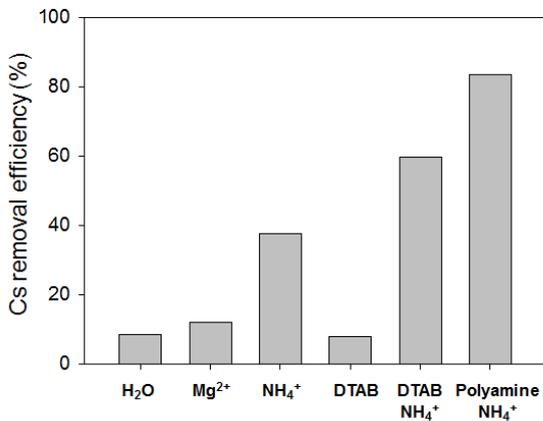


Fig. 2. Cs removal efficiencies (%) obtained from various desorption agents.

용액에 분산시켜 점토 층간을 확장시켰다. 암모늄 이온과 세슘이온을 이용하여 Cs-137의 탈착 효율을 분석하였다. 이중 유기고분자에 의한 점토층 확장과 비방사성 세슘이온에 의한 탈착 실험결과 약 80-90%의 세슘 핵종을 제거할 수 있음을 확인하였다.

3. 결론

방사성 토양 폐기물에는 여러 종류의 점토로 구성되어 있으며, 점토의 층간 내부 및 가장자리에 Cs이 선택적으로 흡착되게 된다. 층간 내부의 Cs을 탈착시키기 위한 방안으로, 계면활성제 또는 유기 고분자를 층간 내부에 끼워넣어 층간 거리를 확장시켰고, 첨가된 암모늄 또는 비방사성 Cs에 의한 방사성 Cs의 탈착에 관한 영향을 평가하였다.

4. 참고문헌

- [1] B. L. Sawhney, "Selective Sorption and Fixation of Cations by Clay Minerals: A Review", *Clays and Clay Minerals*, 20, 93-100 (1972).
- [2] 한국원자력학회, "후쿠시마원전사고분석", (2013).
- [3] K. Fukushi, H. Sakai, T. Itono, A. Tamura, S. Arai, "Desorption of Intrinsic Cesium from Smectite: Inhibitive Effect of Clay Particle Organization on Cesium Desorption". *Environment. Sci. Technol.* 48, 10743-10749 (2014).
- [4] A. J. Fuller, S. Shaw, M. B. Ward, S.. J. Haigh, J. F. W. Mosselmans, C. L. Peacock, S. Stackhous, A. J. Dent, D. Trivedi, I. T. Bruke, "Caesium Incorporation and Retention in Illite Interlayers" *Applied Clay Science* 108, 128-134, (2015).