

요오드 포집된 Bi-embedded SBA-15를 이용한 고화체 제조 및 침출특성

양재환^{1,2*}, 유재욱¹, 박환서¹, 안도희¹, 임만성²

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²한국과학기술원, 대전광역시 유성구 대학로 291

*yjh98@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성 요오드 (I-129) 기체는 사용후핵연료를 열처리하는 과정에서 발생하는데, 인체에 흡입할 경우 갑상선에 축적되어 갑상선 암과 같은 질병을 유발한다. 따라서 시설에서 발생하는 I-129 는 대기로 배출되기 전에 포집재에 포집되도록 조치하여 위험을 줄여야 한다. I-129의 포집재로서 가장 많이 사용되고 있는 것은 은으로 교환된 제올라이트 (AgX, AgZ)이다 [1]. 은 교환 제올라이트의 요오드 포집성능은 우수하나 은의 가격이 비싸고, 제올라이트 기공에 요오드가 물리적으로 포집된다는 치명적인 단점이 있다. 이로 인해 본 연구팀에서는 비스무스가 담지된 SBA-15 (Bi-embedded SBA-15) 을 제조하여 요오드 포집에 이용하였다 [2].

I-129는 매우 긴 반감기를 가지기 때문에 I-129 를 포집한 포집재가 장기적으로 안전하게 처분될 수 있으려면 고화체의 우수한 침출특성이 확보되어야 한다. 따라서 본 연구에서는 요오드가 포집된 Bi-embedded SBA-15를 이용하여 고화체를 제조하였고, 기초 침출특성을 평가하였다.

2. 본론

2.1 Bi-embedded SBA-15의 제조 및 요오드 포집

비스무스가 SBA-15에 용이하게 결합할 수 있도록 SBA-15의 표면을 thiol-group으로 개질하였다. 그 후, 에탄올에 녹인 비스무스 용액에 표면이 개질된 SBA-15를 담가 비스무스를 흡착시킨 후, 250도에서 열처리를 하여 포집재를 완성하였다. 요오드 포집을 위해 요오드 결정과 포집재를 알루미늄 도가니에 넣고 200도에서 6시간 동안 열처리를 하여 포집재에 요오드가 포집되게 하였다. 이 때 포집재 단위질량에 포집된 요오드의 질량은 0.6 g 에 해당하였다. Bi-embedded SBA-15 제조 및 요오드 포집에 관한 상세한 사항은 인용된 참고논문을 통해 확인할 수 있다 [2].

2.2 고화체의 제조

고화 공정 중 발생하는 요오드의 휘발을 최소화 하기 위해 저온소결유리를 매질로 사용하여 고화체를 제조하였다. 저온소결유리는 Bi-Zn-B 계열의 유리로서 Bi₂O₃, ZnO, B₂O₃ 시약을 각각 60.7, 27.8, 11.3wt% 로 혼합한 뒤 1200도에서 1시간 동안 용융시켜 제조하였다. 그림 1은 제조된 Bi-Zn-B에 대한 Tg-DSC 결과로서 유리전이온도가 410도 정도의 낮은 온도에서 나타나므로 저온 소결에 적합하다는 것을 확인할 수 있다. 혼합분말 내 포집재의 비율을 10, 18, 25wt%로 달리 한 세 종류의 혼합분말을 준비하고, 일축 성형기로 100 MPa의 압력을 주어 직경 8.8 mm의 성형체를 제조한다. 그리고 250, 400, 500도에서 각각 1시간씩 열처리를 하여 고화체를 완성한다 (Fig. 2a). 기존에 사용되던 요오드 포집재인 AgX와의 비교를 위해 요오드가 포집된 AgX를 이용하여 고화체를 제조하였다 (Fig. 2b). 고화매질은 동일한 저온소결유리를 이용하였고, 고화체 내 AgX의 비율은 20wt% 였다.

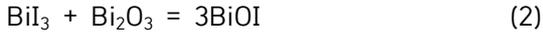
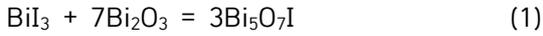
2.3 고화체의 특성분석

제조된 고화체의 특성분석을 위해 X-ray diffraction (XRD) 분석 및 침출시험을 진행하였다. 침출시험을 위해 단기침출시험인 PCT법을 사용하였다.

2.4 결과 및 고찰

Fig. 3은 저온용융유리 및 각 고화체의 XRD 측정 결과를 나타낸다. 저온용융유리의 경우 몇 개의 피크가 나타나는 것을 볼 수 있으며, 이는 저온용융유리가 완전한 비결정질이 아니라 부분적으로 결정물이 섞인 유리-세라믹임을 알 수 있다. JCPDS의 표준피크와 비교하여 밝혀진 피크는 ZnO 결정에 해당한다. 이는 ZnO의 녹는점이 1975도로서 1200도로 가열하였을 때, Bi₂O₃와 B₂O₃는 용융상태에서 반응하여 비결정구조의 새로운 물질이 만들어졌으나 용융되지 않은 ZnO는 부분적으로만 반응하

여 반응하지 않은 ZnO가 검출되었기 때문에 생각할 수 있다. Bi-embedded SBA-15가 포함된 고화체에서는 유리에서 나타나지 않던 새로운 피크가 나타났는데, 이는 Bi₅O₇I와 BiOI에 해당한다. 고화하기 전의 시료에서는 모든 피크가 BiI₃에 해당했으며, 고화체 제조 공정에서 다음과 같은 반응이 일어났음을 알 수 있다.



Taylor는 그의 논문에서 BiI₃에 비해 Bi₅O₇I가 요오드의 수화학적 안정성이 우수함을 보였는데 [3], 이는 고화체 내에 Bi₅O₇I로 존재하는 요오드상이 많을수록 침출특성이 우수한 고화체가 만들어질 수 있음을 시사한다. 현재 침출용액에 포함된 요오드의 농도는 화학분석을 통해 분석될 예정이며, 고화체의 제조조건에 따라 달라지는 요오드의 상과 고화체 침출특성과의 상관관계를 밝혀내고자 한다.

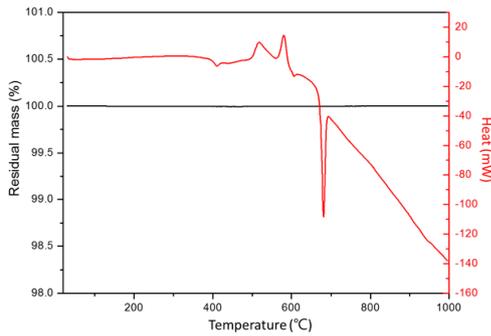


Fig. 1. TG-DSC for Bi-Zn-B glass.

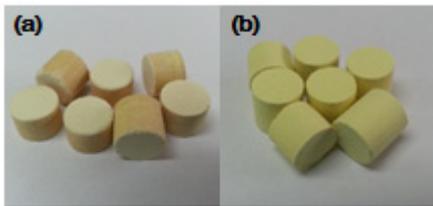


Fig. 2. Waste form samples for (a) Bi-embedded SBA-15 and (b) AgX.

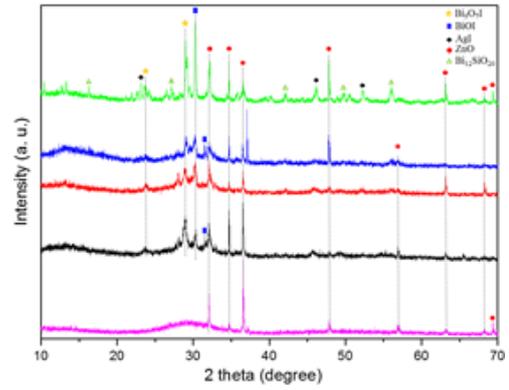


Fig. 3. XRD patterns of low-temperature sintering glass (Bi-Zn-B) and waste form samples.

3. 참고문헌

- [1] K.W. Chapman, P.J. Chupas, and T.M. Nenoff, "Radioactive Iodine Capture in Silver-Containing Mordenites through Nanoscale Silver Iodide Formation", *J. Am. Chem. Soc.*, 132(26), 8897-8899 (2010).
- [2] J.H. Yang, Y.J. Cho, J.M. Shin, and M.S. Yim, "Bismuth-Embedded SBA-15 Mesoporous Silica for Radioactive Iodine Capture and Stable Storage", *J. Nucl. Mater.* 465, 556-564 (2015).
- [3] P. Taylor and V.J. Lopata, "Bismuth Oxyiodide: A Candidate Waste Form for Iodine-129", Atomic Energy of Canada Limited, TR-350 (1985).