

# Cs 흡착제의 고온 열처리에 따른 광물학적 특성 연구

이근영\*, 김지민, 오맹교, 이일희, 김광욱, 정동용, 문제권  
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111  
\*lky@kaeri.re.kr

## 1. 서론

원자력 시설의 운영중 또는 해체 과정에서 매우 다양한 종류의 방사성폐기물이 발생할 수 있다. 또한 원자력 시설과 관련한 중대사고의 발생 시 대량의 방사성폐기물이 발생하게 되고, 특히  $^{137}\text{Cs}$ 과 같은 방사성 핵종을 포함한 고방사성 폐액의 경우 신속한 처리와 환경 누출의 최소화를 가능하게 하는 효과적인 처리기술의 개발이 요구되고 있다.

$^{137}\text{Cs}$ 의 경우 비방사능이 높고 반감기가 길어서 지난 오랜 기간 동안 방사성폐기물 처리 연구분야에서 중요한 대상이 되어 왔는데, 현재까지 수용액 상에서 Cs를 제거하기 위한 매우 다양한 종류의 흡착제 개발 연구가 수행되었고, 더불어 방사성폐기물의 처분 관점에서 사용후 흡착제의 화학적, 방사학적, 열적 안정성 연구 역시 매우 중요한 분야로 인식되고 있다.

본 연구에서는 대상 흡착제를 고방사성 Cs 오염수 처리에 적용하였을 경우를 가정하여 이를 고온 열처리를 통해 인공 광물화시키는 과정에서 흡착제의 광물학적 특성을 평가하고자 하였다.

## 2. 본론

### 2.1 실험 방법

#### 2.1.1 시료 준비

Cs을 이미 흡착한 흡착제 시료를 만들기 위해 증류수에 비방사성 Cs을 1000 mg/l가 되도록 녹여 용액 시료를 준비하였고, 흡착제로는 제올라이트의 일종인 chabazite (CHA), Cs 흡착능이 매우 뛰어난 potassium cobalt ferrocyanide (PCFC), potassium cobalt ferrocyanide를 첨착시킨 chabazite (HYB), potassium cobalt ferrocyanide와 chabazite의 단순 혼합상 (MIX) 이렇게 총 4종류를 준비하였다. 흡착제를 Cs 용액에 넣고 ( $m/V=1\text{g/L}$ ) 2 시간 동안 교반 후 고액분리 하여 고체시료를 얻었고, 증류수로 수회 세척하여 흡착되지 않은 잔류 Cs을 대부분 제거한 후 건조하여 Cs을 흡착한 흡착제 시료를 준비하였다.

#### 2.1.2 열처리 실험

흡착제 시료의 고온 열처리에 따른 특성을 분석하기 위하여 열중량 분석기 (TGA)를 이용하여 온도 증가에 따른 흡착제 시료의 중량 변화를 관찰하였고, 500 ~ 1100°C 범위에서 열처리한 시료들을 대상으로 X선 회절분석 (XRD)을 통해 광물상 분석을 수행하였다.

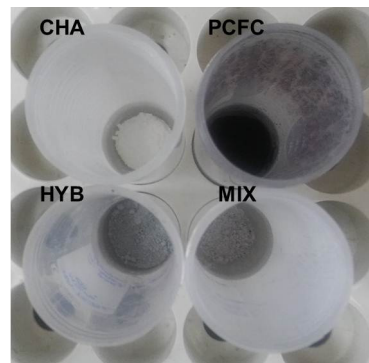


Fig. 1. Pictures of prepared adsorbents.

### 2.2 결과 및 토의

단일 흡착제인 CHA와 PCFC의 경우, 기존의 연구들에서 이미 확인된 바와 같이 확연하게 다른 열분석 결과를 나타내었다. TGA 분석 결과, CHA의 경우 100 ~ 200°C 온도 범위에서 입자 내 함유되어 있던 수분만이 제거되고 더 높은 온도에서는 큰 무게변화 없이 유지되는 것을 알 수 있었다. 반면, PCFC의 경우 수분이 제거된 이후에 ferrocyanide의 열분해가 시작되어 1100°C 까지 지속적으로 무게감량이 일어나는 것으로 나타났다. HYB 및 MIX와 같이 복합 흡착제 형태인 경우는 CHA와 PCFC의 무게변화 경향성이 혼합되어 나타나는 특징을 보였다. 따라서, PCFC가 어떤 형태로 존재하던 ferrocyanide의 고온 열분해 특성은 관찰되었다.

CHA의 경우 900°C까지 원래의 chabazite의 XRD 피크가 관찰되었고, 1100°C에서는 pollucite로 재결정이 이루어지는 것을 확인하였다 (Fig. 2(A)). PCFC의 경우는 ferrocyanide의 분해가 이루어진 이후 500°C에서는 대체로 비정질이 많이

포함된 XRD 패턴이 관찰되었고, 이후 900 ~ 1100°C 온도 범위에서는 metal oxide 형태의 광물상으로 재결정됨을 알 수 있었다 (Fig. 2(B)).

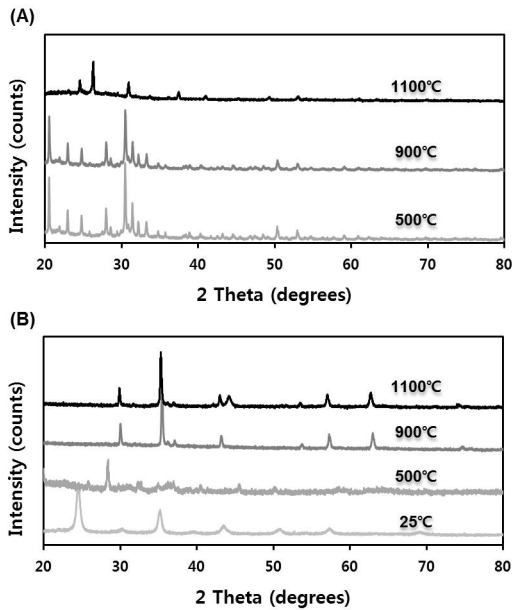


Fig. 2. XRD patterns of (A) CHA and (B) PCFC after calcination at different temperatures.

CHA와 PCFC가 공존하는 형태의 HYB와 MIX 타입의 흡착제의 경우 앞서 확인된 열중량 분석결과에서와 마찬가지로 유사한 광물상 변화 경향을 보였다 (Fig. 3). 가열 온도를 500°C로 한 경우는 열처리를 하지 않은 상태인 chabazite와 같은 XRD 패턴을 나타내는 것으로 보아, PCFC는 고온 열처리에 의해 분해되고 CHA는 분해되지 않고 다른 상변화 없이 그대로 존재한다는 것을 알 수 있었다. 그러나 900°C 이상의 온도에서는 오직 pollucite 피크만을 관찰할 수 있었는데, PCFC 단일 흡착제의 열처리 후 발견된 metal oxide 피크가 관찰되지 않은 것은 ferrocyanide 열분해 후 잔류하는 metal 원소가 pollucite 결정 내 양이온 형태로 치환되었기 때문인 것으로 생각된다. 또한, 더욱 흥미로운 결과는 CHA 단일 흡착제의 경우 900°C 조건에서 pollucite의 재결정이 관찰되지 않았음에도 불구하고, HYB와 MIX 같은 혼상의 경우에는 동일한 조건에서도 pollucite 재결정이 가능하였다는 것인데, 이는 흡착제와 공존하는 metal 원소가 chabazite의 pollucite 재결정을 향상시키는 역할을 하였기 때문인 것으로 사료된다. 따라서 Cs를 흡착한 흡착제의 고온 열처리에 의한 인공 광물화를 위해 CHA와 PCFC의 공존 조건이 단일 흡착제

조건에 비해 더 유리함을 알 수 있었다.

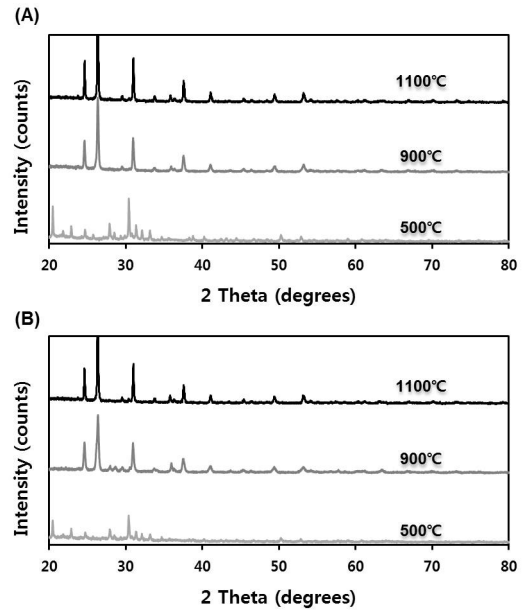


Fig. 3. XRD patterns of (A) HYB and (B) MIX after calcination at different temperatures.

### 3. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발 중장기 계획사업 일환으로 수행된 연구결과입니다.

### 4. 참고문헌

- [1] 이근영, 박민성, 이일희, 김광욱, 정동용, 문제권, "Cs 오염수 처리를 위한 hybrid 흡착제의 합성과 특성 연구", 한국방사성폐기물학회 2014 춘계학술발표회 논문요약집, 12(1), 243-244, 5.7~9, 2014, 평창.
- [2] P. Cappelletti, G. Rapisardo, B. de Gennaro, A. Colella, A. Langella, S.F. Graziano, D.L. Bish, M. de Gennaro, "Immobilization of Cs and Sr in aluminosilicate matrices derived from natural zeolites", J. of Nuclear Materials, 414, 451-457 (2011).