PMOS를 이용한 하나로 실제 폐수 중 삼중수소의 제거현상 관찰

이성호[1*], 손우정[1,2]
[1]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[2]과학기술연합대학원대학교, 대전광역시 유성구 가정로 217
*shlee6@kaeri.re.kr

1. 서론

하나로는 연구용 원자로로서 중수(D_2O)를 반사체로 사용하기 때문에 삼중수소수(tritiated water)를 함유하는 폐수가 방사성폐기물로 발생한다. 연구원 내 방사성폐기물은 방사성폐기물처리시설에서 처리하고 있지만 삼중수소수를 포함하는 방사성폐수를 처리할 수 있는 기능이 없기 때문에 자연 증발처리를 하고 있으며 방사성폐수 중 삼중수소의 농도를 4×10^7 Bq/㎥ 이하로 엄격하게 규정하고 있다. 삼중수소 폐기물의 주된 원인이 되는 중수 중의 삼중수소 제거에 관하여서는 비교적 많은 연구 및 기술 개발이 이루어지고 있지만 삼중수소수를 함유하는 실제 방사성폐기물에 대한 처리방법이 미미한 실정이다[1,2]. 이는 삼중수소수는 물(H_2O)과 물리화학적 성질이 상당히 유사하기 때문에 다량의 물에 혼합된 삼중수소를 물로 분리하는 것이 아주 어려운 공정이기 때문이다. 최근 일본 교토대에서 발표한 연구 결과 [3]에 따르면 고온의 solid 반응에서 제조한 spinel type 산화망간에 수소이온을 함침시켜 제조한 PMOS (Protonic Manganese Oxide Spinel)를 이용하여 삼중수소를 포함한 물에 반응시키면 수중의 삼중수소 농도가 뚜렷하게 저하되는 현상을 발견하였다. 본 연구에서는 PMOS를 직접 제조하여 하나로에서 발생하는 삼중수소수를 포함하는 실제 폐수를 이용하여 폐수 중 삼중수소 제거하는 실험을 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

2.1.1 PMOS 제조

고온의 furnace에서 $MnCO_3$ 및 $LiOH{\cdot}H_2O$를 Li/Mn=0.5(mole ratio) 혼합하여 800℃의 고온에서 24시간 Solid 반응시킴으로 팔면체 결정 구조(octahedral crystal)를 가지는 Spinel-type $LiMn_2O_4$ powder를 합성 제조한 후 0.5 g의 $LiMn_2O_4$를 0.5 M HCl 용액 1리터에 1 시간 동안 혼합시켜 산 처리하여 결정 구조 내 수소이온을 함침시킨 PMOS를 제조하였다. 제조된 PMOS의 XRD 분석 결과는 Fig. 1에 나타내었다.

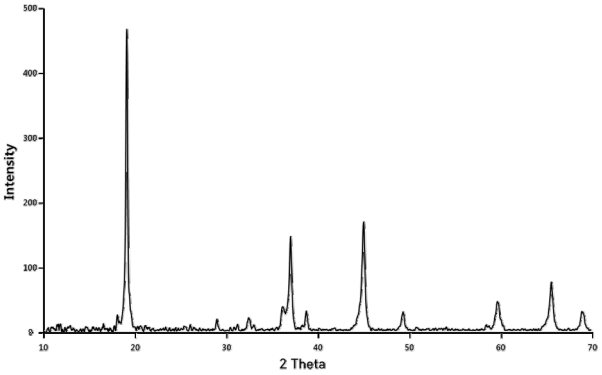

Fig. 1. X-ray power diffraction patterns of prepared PMOS.

2.1.2 삼중수소 제거 실험

제조된 PMOS를 이용한 삼중수소의 제거 실험을 위해 사용된 test water는 하나로에서 발생된 삼중수소를 포함하는 실제 폐수를 이용하였다. 실험에 사용된 삼중수소수는 고방사성으로 실제 폐수를 1000배 희석하여 실험에 사용되었다. 실제 폐수 중 삼중수소 제거 실험을 위해 제조된 PMOS 0.5 g을 test water 100 ㎖에 넣은 후 magnetic stirrer를 이용하여 계속 교반시키면서 실험 중 삼중수소의 농도변화를 확인하기 위해 시작 전, 10 분, 20 분, 30 분, 50 분, 60 분 반응 후 각각 disposable filter (0.2 ㎛ mesh)가 부착된 syringe를 이용하여 약 1㎖의 시료를 채취하였다. 각 반응 후 pH가 급격히 떨어지면 0.1 M NaOH 용액을 이용하여 pH 5-6인 조건을 유지하면서 시간에 따른 삼중수소의 농도 변화를 관찰하였다. 실험과정 중에 채취된 용액시료는 연구소 내 화학분석실에 의뢰하여 LSC (Liquid scintillation counter)를 이용하여 분석하였다.

2.2 실험결과

Fig. 2는 PMOS 0.5 g과 하나로에서 발생된 삼중수소수 100 ㎖와 반응시킨 후 채취된 시료(1 ㎖)의 삼중수소의 농도변화를 나타낸 것이다. 삼중수소의 농도는 처음에 다소 증가였으나 증가폭은 미미하다. 이후 20 분 동안 농도가 감소하여 최소의 농도를 나타내었다. 이 때 PMOS가 삼중수소를 제거하고 있음을 알 수 있다. 반응 30 분 이후에는 삼중수소의 농도가 다시 증가하여 반응 50 분 후와 60 분 후에는 초기 농도 변화와 유사한 경향을 나타내었다. PMOS는 초기 반응에서는 삼중수소를 제거하였으나 일정 시간 이후에는 삼중수소를 분리하는 현상을 확인할 수 있었다.

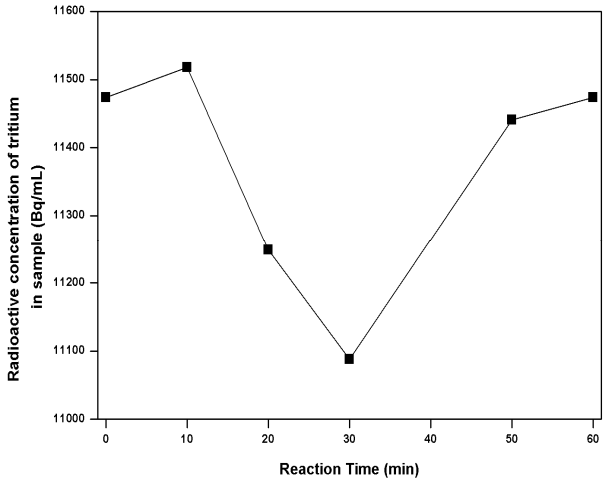

Fig. 2. Variation in the radioactive concentration of T in a test water sample.

3. 결론

본 실험에서 Spinel-type $LiMn_2O_4$ powder를 직접 제조한 후 0.5 M HCl 용액 1 리터 용액에 산처리하여 결정구조 내 수소이온을 함침시킨 PMOS를 이용하여 하나로에서 발생되는 삼중수소를 함유하는 실제 폐수를 이용하여 삼중수소 제거 특성을 연구하였다. 실험결과 삼중수소수를 함유한 폐수와 반응 시킨 결과 초기농도에 대해 감소하는 현상을 확인하였고, 삼중수소의 농도가 충분히 감소한 시점에서 삼중수소를 제거한 PMOS를 삼중수소수를 함유한 폐수로부터 고액분리를 함으로써 삼중수소를 분리할 수 있음을 확인하였다. 앞으로 PMOS를 이용한 삼중수소 제거율 향상을 위한 연구를 계속 수행할 예정이다.

4. 참고문헌

[1] 임성팔, 이중희, 김형규, 정환성, 이처경, "삼중수소수 함유 폐수의 증발 처리에 대한 검토", 한국분석과학회 2011 추계학술대회 발표 논문요약집, p.300 (2011).

[2] 임성팔, 정흥석, 김광락, 최희주, 이호진, 안병길, 이민수, "하나로 방사성폐기물 처리 및 저감 연구", KAERI/RR-2733 (2006).

[3] H. Koyanaka and H. Miyatak, "Extracting Tritium from water Using a Protonic Manganese Oxide Spinel", Sep. Sci. Technol. 50:2142-2146 (2015).