

표면오염 내 방사성 세슘 제거용 자성흡착제/고분자 용액의 제조 및 특성 분석

양희만,* 황규선, 박찬우, 이근우, 서범경, 문제권

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*hmyang@kaeri.re.kr

1. 서론

후쿠시마 원전사고 후, 많은 양의 방사성 핵종들이 환경으로 유출되어 바람과 비에 의해 토양, 도로, 건물 등의 대면적의 표면에 흡착되었다. 이들 방사성 핵종들 중, 높은 반감기 (약 30년) 및 감마선의 높은 에너지로 인해 방사성 세슘은 가장 위험한 방사성 핵종들로 알려져 있다. 따라서 방사성 세슘으로 오염된 다양한 주거지 시설표면을 복원하기 위해 다양한 표면오염 제거 방법들이 적용되었다. 이중, 고압수를 이용한 표면오염 제거 방법이 많이 적용되었으나 오염 표면 조건에 따라 낮은 제거효율을 보여주었으며, washing에 사용된 물이 사용 후 방사성 핵종으로 오염되어 대량의 오염수가 발생하는 문제점이 있다. 비록 grinding, vacuum cleaner 등과 같은 기계적인 방법은 유효한 제거효과를 보여주었으나, 대면적의 오염표면에 적용하기엔 어려운 단점이 있다. 또한 화학적 방법인 strippable coating agent 역시, 70-80%의 우수한 방사성 핵종 제거 효율을 보여주었으나, 물질 구성성분인 solvent와 chelator는 인체에 유해한 물질을 사용하고 있으며, 방사성 핵종 제거에 사용된 coating 물질은 그대로 방사성 폐기물이 되기 때문에 많은 양의 방사성 폐기물이 발생한다는 단점이 있다.

본 연구에서는 대량 오염수 발생 (고압수 이용시), 방사성 폐기물 발생 및 유해물질 사용으로 인한 2차 환경오염 (strippable 코팅제) 발생 위험의 단점을 해결하고자 새로운 오염 표면 복원제를 개발하였다. 이를 위해 온도 변화에 따라 고분자 용액과 필름 형성이 가역적으로 변하는 온도 민감성 polyvinyl alcohol-borate complex 소재 및 방사성 세슘 흡착용 자성흡착제를 이용하여 방사성 오염표면 복원용 소재로의 활용 가능성을 살펴보았다. 위 표면오염 복원 소재는 표면 내 방사성 세슘 제거 후 외부자기장을 이용하여 자성흡착제만을 선택적으로 자성회수 할 수 있어 방사성 세슘을 포집하고 있는 자성흡착제만을 방사성 폐기물로 처리하며 방사성 폐기물의 양을 획기적으로 저감할 수 있으며, 동시에 polyvinyl alcohol-borate complex는 재활용이 가능하며 대면적 방사성 오염표면 복원

소재로 활용 가능성이 매우 우수하다.

2. 본론

2.1 제조 방법

2.1.1 자성흡착제 제조 방법

본 연구에서 사용된 자성흡착제는 본 연구그룹이 최근에 보고한 구리-페로시아나이드가 도입된 자성흡착제 제조² 이용하여 세슘 제거율이 향상된 자성나노클러스터 기반의 철-페로시아나이드가 도입된 자성흡착제를 합성하여 사용하였다.

2.1.2 자성흡착제/고분자 복원소재 제조

오염표면 복원 소재를 제조하기 위해 적정량의 polyvinyl alcohol과 borate를 물상에 첨가하여 용해시킨다. 자성흡착제/고분자 용액의 온도에 따른 거동변화를 평가하기 위해 온도 및 첨가물의 비율에 따른 유변학적 특성을 분석하였다. 또한, 제조된 자성흡착제/고분자 복원소재를 이용하여 방사성 세슘으로 오염된 페인트가 코팅된 시멘트에 대한 방사성 세슘 제거 성능을 평가하였다.

2.2 실험 결과 및 고찰

TEM, XRD, VSM 등의 화학분석을 통해 제조된 자성흡착제가 외부자기장에 의해 자화되는 초상자성을 가지는 것을 확인하였다. Fig. 1에서 보는바와 같이 2050 cm^{-1} 위치에서 매우 강한 흡수 peak를 보여주는데 이는 cyanide group (CN)을 나타내는 특정 band로 ferrocyanide가 성공적으로 접목되었음을 보여준다. 제조된 자성흡착제의 세슘 흡착특성 실험 결과 99.9% 이상의 세슘 제거 효율을 확인하였다.

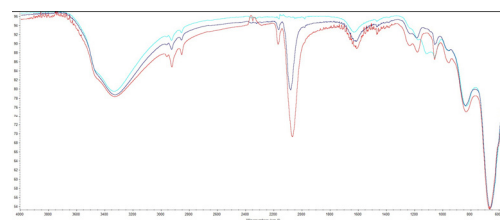


Fig. 1. FTIR spectra of magnetic nanocluster (sky blue) and Fe-ferrocyanide coated magnetic adsorbent (red&blue).

Fig. 2는 위에서 제조된 자성흡착제와 PVA-borate 고분자 복합체가 용해된 수용액의 온도에 따른 변화를 관찰한 그림이다. 그림에서 보는바와 같이 흡착제/고분자 용액은 55도에서 점도가 있는 액체 상태의 거동을 보여주나, 25도에서는 PVA-borate 간의 complex 형성에 의해 견고한 겔 상태의 거동을 보이는 것을 확인 할 수 있다.

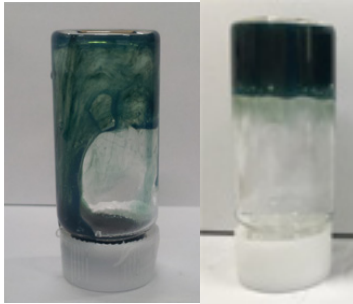


Fig. 2. Digital images of aqueous solution of adsorbent/PVA-borate at 55°C (left) and 25°C (right).

상기에서 제조된 흡착제/고분자 표면오염 복원소재를 이용하여 방사성 세슘으로 오염된 페인트가 코팅된 시멘트 표면에 대한 방사성 세슘 제거 실험 결과, 40-50% 정도의 제거 효율을 보이는 washing 방법에 비해 약 2배 정도인 83% 이상의 세슘 제거 효율을 보여주었다.

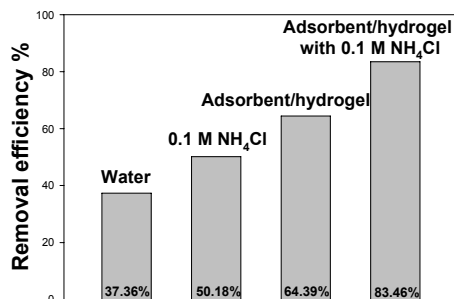


Fig. 3. The removal performance of adsorbent/PVA-borate hydrogel on the 137Cs-contaminated surface of paint coated cement.

Fig. 4에서 보는바와 같이 사용후 표면오염 복원소재는 단순 물 첨가 후 외부 자석에 의해 방사성 세슘을 흡착하고 있는 자성흡착제만의 100% 회수가 가능하였으며, 수용액에 남아 있는 고분자 용액은 재사용이 가능하다는 것을 확인하였다.

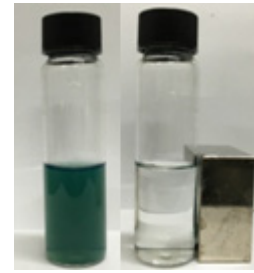


Fig. 4. Magnetic separation of adsorbent from PVA-borate solution using a magnet after dissolving the adsorbent/hydrogel film into water.

3. 결론

본 연구에서는 고체 오염 표면 내 존재하는 방사성 세슘을 제거하기 위해 온도 민감성 polyvinyl alcohol-borate 용액에 자성흡착제를 혼합하여 방사성 세슘만을 선택적으로 제거할 수 있는 흡착제/고분자 복원소재를 제조하고자 하였다. 위 복원소재의 제조 조건을 도출하기 위해 polyvinyl alcohol과 borate의 함량 및 온도에 따른 복원소재의 특성 변화를 살펴보았다. 자성흡착제가 첨가된 표면오염 복원소재는 80% 이상의 우수한 방사성 세슘 제거 효율을 보여주었다. 또한, 사용 후 복원소재는 외부자기장을 이용하여 자성 흡착제만을 회수할 수 있어 방사성 폐기물 발생량을 현저히 줄일 수 있다.

4. 감사의 글

This research was supported by the Korea Ministry of Education, Science, technology Grant (No.2012M2A8a5025996)

5. 참고문헌

- [1] N. Kinoshita, K. Sueki, J. Sasa, J. Kitagawa, S. Ikarashi, T. Nishimura, Proc. Natl. Acad. Sci. USA 108 (2011) 19526-19529.
- [2] H.-M. Yang, S.-C. Jang, S. B. Hong, K.-W. Lee, C. Roh, Y. S. Huh, B.-K. Seo, J. Alloy. Compd. 657 (2016) 387-393.