

사용후 Cs 흡착제의 열처리에 따른 안정성 평가

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

1. 서론

원전 중대사고와 같은 원자력 시설의 비정상적 상황에서는 고방사성 폐액이 대용량으로 발생될 수 있는데, 특히 비방사능이 높고 반감기가 긴 ^{137}Cs 과 같은 문제 핵종을 포함한 경우 폐액의 처리뿐만 아니라 처리 후 발생하는 2차 폐기물의 안전한 처리와 관리가 요구되어 진다. 기존의 여러 연구들에서 고방사성 핵종의 안정화를 위하여 핵종을 함유한 고체를 열처리하여 원래보다 안정한 형태의 새로운 결정체로 변환시키는 이른바 광물화 (mineralization) 연구가 수행되어 왔는데, 휘발성 핵종인 ^{137}Cs 의 경우는 고온으로 열처리하였을 시 휘발하여 고체상으로 안정하게 변환되지 않고 오히려 추가적으로 배기체 처리를 해야 하는 문제가 발생되어 안정화가 쉽지 않은 핵종인 것으로 볼 수 있다.

본 연구에서는 선행 연구를 통해 확보된 metal ferrocyanide 함침 zeolite를 고방사성 Cs 오염수 처리에 적용하였을 경우를 가정하여 이를 고온 열처리를 통해 인공 광물화시키는 과정에서 Cs의 휘발특성과 열처리 후 Cs의 안정화 정도를 상호비교하여 타당한 열처리 조건을 평가하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험 방법

2.1.1 시료 준비

본 연구에서는 기 합성된 metal ferrocyanide 함침 zeolite를 대상으로 Cs을 흡착한 후에 고온 열처리를 통한 Cs의 안정성을 평가하고자 하였다. Hybrid 흡착제 합성에 사용된 물질은 수용액 상에서 Cs의 제거능이 우수한 것으로 평가된 chabazite (CHA)와 potassium cobalt ferrocyanide PCFC) 이고, 함침 물질의 함량을 11.8 ~ 23.2% 범위에서 변화시켜 여러 타입의 흡착제를 준비하였다.

Cs을 흡착한 흡착제 시료를 만들기 위해 증류수에 ^{137}Cs 을 극미량 포함하면서 전체 Cs 농도는 1 mg/L 가 되도록 녹인 용액 시료를 준비하였고, 흡착제를

Cs 용액에 넣고 (m/V=10 g/L) 2 시간 동안 교반 후 고액분리 하여 고체시료를 얻었고, 증류수로 수회 세척하여 흡착되지 않은 잔류 Cs을 대부분 제거한 후 건조하여 시료를 준비하였다.

사용된 흡착제 시료의 고온 열처리에 따른 중량 변화 특성을 분석하기 위하여 열중량 분석기 (TGA)를 이용하여 온도 증가에 따른 감량율을 측정하였다.

2.1.2 열처리 실험

Ca을 합착한 흡착제 시료의 고온 열처리에 따른 안정성을 분석하기 위하여 전기로 (Furnace)를 이용하여 500 ~ 900°C 범위에서 시료 열처리를 수행하였고, 가열 온도, 가열 시간 등의 변화에 따른 Cs의 휘발을 및 열처리 후 Cs의 수용액상 용출율을 비교 분석하였다. Cs의 휘발을 측정은 열처리 전후의 ^{137}Cs 의 γ -activity를 MCA (Multi channel analyzer)로 측정하여 비교하였고, Cs 용출율은 열처리가 끝난 흡착제를 1 M NaCl 용액에 넣고 (m/V=1g/L) 2 시간 동안 교반 후 고액분리 하여 상등액으로 용출된 Cs을 정량하여 용출율을 평가하였다.

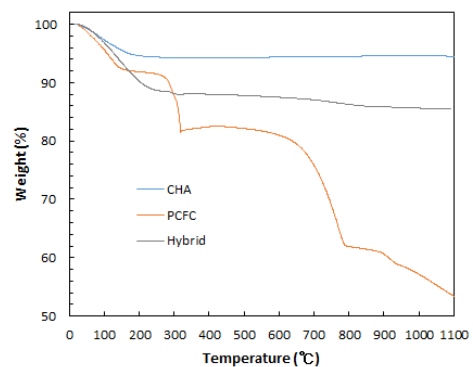


Fig. 1. Thermal gravity analysis of Cs adsorbents.

2.2 결과 및 토의

합성된 hybrid 흡착제는 chabazite와 potassium cobalt ferrocyanide의 중량 변화 경향성이 혼합되어 나타나는 경향성을 보였는데, 이를 통해 Cs을 흡착하고 있는 상태의 hybrid 흡착제를 고온 열처

리하였을 시 Cs 휘발 역시 복합된 두 물질의 특성을 반영할 것으로 예상할 수 있다. Potassium cobalt ferrocyanide의 경우 TGA 결과에서 보는 바와 같이 CN의 분해에 따라 결정 구조가 깨지고 같이 존재하던 Cs이 쉽게 휘발되지만, chabazite의 경우는 비교적 높은 온도까지 Cs의 휘발이 없이 pollucite와 같은 광물상으로 재결정 되는 특성을 보인다. 따라서, 이 두 물질이 공존하는 hybrid 흡착제의 경우 함침된 potassium cobalt ferrocyanide가 열분해 되면서 Cs이 휘발되지만 chabazite는 Cs의 휘발을 억제하고 보다 안정한 형태로 변환시킬 가능성을 갖는다.

Table 1에서 보는 바와 같이 Cs을 이미 흡착한 hybrid 흡착제를 700°C 온도에서 가열시간을 달리 하여 처리하였을 때 최대 6 시간까지 Cs의 휘발이 없는 것으로 나타났는데, 이는 Cs을 흡착한 potassium cobalt ferrocyanide 단일물질이 500°C 이상에서 급격하게 휘발되는 특성과는 큰 차이를 보이고 있다. 가열시간을 증가시킴에 따라 Cs의 용출율이 감소하는 것은 열처리를 통해 Cs의 안정성이 향상될 수 있음을 보여주는 것이고, 앞서 예측한 hybrid 흡착제의 열처리 특성이 증명되었음을 시사한다.

Table 1. Thermal stability of Cs on the different heating time in the hybrid adsorbent

No	Temp.	Time	Cs volatilization	Cs leaching
1	700°C	0hrs	0%	11.48%
2	700°C	2hrs	0%	12.8%
3	700°C	4hrs	0%	9.88%
4	700°C	6hrs	0%	5.47%
5	700°C	10hrs	6.98%	4.81%

가열시간을 2 시간으로 일정하게 하고 가열온도를 700°C부터 850°C까지 변화시킨 실험에서는 가열온도 증가에 따라 Cs의 휘발율이 증가하는 결과를 얻었고, 750°C까지는 Cs의 휘발이 없는 것을 확인할 수 있었다. 반면, Cs의 용출율은 가열온도의 증가에 따라 현저히 감소하는 경향을 나타내어 Cs이 안정화될 수 있음을 재차 확인하였다.

이러한 Cs 흡착제의 열처리 후 Cs 휘발율 및 용출율을 복합적으로 분석함으로써, Cs의 휘발은 없

고 고체상에서 보다 안정한 형태로 변환시킬 수 있는 최적 열처리 조건을 도출 할 수 있을 것으로 사료된다.

Table 2. Thermal stability of Cs on the different temperatures in the hybrid adsorbent

No	Temp.	Time	Cs volatilization	Cs leaching
1	700°C	2hrs	0%	12.8%
2	750°C	2hrs	0%	2.48%
3	800°C	2hrs	5.18%	0.44%
4	850°C	2hrs	19.28%	0.12%

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] 이근영, 김지민, 오맹교, 이일희, 김광욱, 정동용, 문제권, "Cs 흡착제의 고온 열처리에 따른 광물학적 특성 연구", 한국방사성폐기물학회 2015 춘계학술발표회 논문요약집, 13(2), 419-420, 10.14~16, 2015, 부산.
- [3] 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).