

# 韓國產 Vermiculite 에 依한 放射性同位元素 吸着研究

韓國原子力研究所

文 錫 亨

=Abstract=

## Adsorption Study on the Radioactive Liquids by Korean Vermiculite

Suc-Hyong Moon

Korea Atomic Energy Research Institute

The use of ion-exchange resins for the treatment of radioactive wastes has many advantages, but these are rather expensive as compared with the Korean vermiculite. The Korean vermiculite has slightly different chemical constituents from the ones produced in other countries, and its physical properties might be applicable to the management of radioactive waste in a small nuclear installation. The decontaminating effect of Korean vermiculite for the low-level radioactive liquid was investigated.  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ , and  $^{137}\text{Cs}$  were utilized for the experiments. The removal rates by Korean vermiculite were calculated for  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  and the removal rates increased as the weight of vermiculite in the exchange column increased.

The decontaminating constants,  $K_d$ , of the Korean vermiculite for  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  were 2.7, 69.3 and 263 ml/g respectively. Through the results of experiments, the application of Korean vermiculite column to the treatment of low-level radioactive waste is quite feasible.

本論文은 韓國產 vermiculite 의 放射性廢液處理에 關한 研究이다.

### I. 서 론

放射性同位元素의 使用度가 增加됨에 따라 放射性廢液處理가 問題化되고 있다. 放射性廢液處理施設을 具備치 못한 機關에서는 簡便하게 利用될 수 있는 處理方法의 開發이 要望된다.

放射性廢液을 處理하는 데는 多量의 물로 稀釋하여 허용농도 以下로 만드는 方法, 그대로 貯藏하여 崩壞시키는 方法, 되도록 작은 溶液으로 濃縮하여 地中에 묻어버리던가 海中에 沈澱시키는 方法 등이 있다. 理想的 廢液處理方法은 放射能을 含有치 않은 물과 分散이 容易치 않은 固體廢棄物로 分離하여 處理하는 것이다. 在來式 廢水處理方法을 改善하여 粘土鑛物을 利用한 交換吸着方法으로 放射性廢液을 處理하는 方法이 많이 研究되어 왔다<sup>1-6)</sup>. 이같은 粘土鑛物中에서 vermiculite 는 價格이 싸고 產地가 廣範하며, 그 吸着性이 높은 것으로 알려져 있다.

### II. 研究方法

放射性溶液은 鑛物質이 除去된 蒸溜水에 The Radiochemical Center 에서 수입한  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  등을 添加하여 만들었다.

圓柱型유리管(直徑 5 cm, 높이 20 cm)에 韓國產 vermiculite 를 넣어, 이 管을 통해 放射性溶液을 通過시켜, 放射性物質 除去率을 測定하였다. 放射性溶液 注入前後의 放射能을 Beckman 製 Lowbeta II 測定裝置로 測定하고, 다음 식에 代入하여 放射性物質除去率을 計算하였다.

$$\text{除去率(\%)} = \left[ 1 - \left( \frac{\text{通過液의 放射能}}{\text{試液의 放射能}} \right) \right] \times 100$$

放射性溶液은 500 ml 씩 注入하였고, 除去物質의 무게를 달리하여 除去率을 測定하였다.

Table 1. Characteristics of radioactive isotopes used

R.I.	Chemical composition	Half-life (year)	Specific radioactivity ( $\mu\text{Ci/ml}$ )	Manufacturer
$^{106}\text{Ru}$	Nitrosyl ruthenium nitrate complex	1	$5.71 \times 10^{-2}$	Radiochemical Centre
$^{90}\text{Sr}$	$\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$	28	$1.25 \times 10^{-2}$	Radiochemical Centre
$^{137}\text{Cs}$	$\text{CsCl}_3$	27	$6.25 \times 10^{-3}$	Radiochemical Centre

放射性物質 除去材의 除去能  $K_d$ 를 다음 式으로 計算하였다.

$$K_d(\text{ml/g}) = \left[ \frac{(\text{시액의 放射能})}{(\text{通過液의 放射能})} - 1 \right] \frac{V}{G}$$

여기서 V는 유리 column 內에 注入한 放射性溶液量 (ml)이고, G는 圓柱型유리 column에 넣은 除去劑의 무게(g)를 表示한다. 使用된 放射性同位元素의 諸元은 表 1에 表示하였다.

### III. 結果 및 考察

韓國產 vermiculite에 依한 放射性溶液中的 放射性物質 除去實驗 結果는 表 2, 3과 Fig. 1, 2, 3에서 보는 바와 같다. Dowex 50 W 이온交換樹脂에 依한 除去實驗도 아울러 實施하여 表 2, 3에 表示된 結果를 얻었다.

除去實驗에 使用한 除去用物質은 韓國 忠淸南道 瑞山—廣川地方에서 產出되는  $700^\circ\text{C}$ 로 燒成된 vermiculite<sup>8)</sup>로 exfoliate된 것과 Dowex 50 W를 使用하였다.

表 4에서 볼 수 있듯이, 韓國產 vermiculite는 Ca와 Fe成分이 外國產과 比較하여 많고, Mg와 K成分이 적은 것이 特徵이다. 그리고 色은 黃銅色이다<sup>8)</sup>.

Vermiculite는 Al과 Fe成分이 많이 包含된 水化마그네슘矽酸鹽으로 急히 加熱時 기열된 것이 垂直方向으로 6~20倍 膨脹하여 만들어진 二次礦物로서, 水分이 蒸發하고 數萬겹의 기열을 形成한다. 急熱로 膨脹된 狀態의 vermiculite는 매우 가볍고 多孔性이며, 熱傳導率이 낮고 吸音效果가 있고 遊離分子들을 選擇的으로 吸着하는 性質이 있다. 이 吸着性이 放射性廢液處理에 利用될 수 있는 것이다.

$^{106}\text{Ru}$  除去率을 表 2와 Fig. 1에서 보면, vermiculite

나 Dowex 50 W에 依한 除去率이 過히 좋은 편이 아니지만, vermiculite의 量이 많아질수록 增加되는 現象을 보이고 있고, 同一 容積의 vermiculite로 充填된 column이며, 粒子가 작을수록 除去劑의 무게가 무거워지니까, 粒子의 크기와 除去率의 增加는 比例關係가 있다. 그러나 表 3에서 보는 바와 같이  $^{106}\text{Ru}$ 에 대한 vermiculite의 除去能  $K_d$ 는 2.7 밖에 안되고 Dowex 50 W亦是 2.1에 不遇하다.

$^{90}\text{Sr}$  除去率을 表 2와 Fig. 2에서 보면 韓國產 vermiculite의 除去率이 vermiculite 무게의 增加와 더불어 增加되고 있음을 알 수 있으며, Dowex 50 W와 비슷한 除去率을 나타낸다. 그리고 表 3의  $^{90}\text{Sr}$  除去能이 ver-

Table 2. Removal rate of radioactive isotopes by Korean vermiculite and Dowex 50 W

Weight (g)	Vermiculite					Dowex 50 W
	29.5	32.0	38.5	46.0	54.0	143
	Removal rate (%)					
$^{106}\text{Ru}$	21.9	33.6	34.0	52.0	62.3	60.5
$^{90}\text{Sr}$	75.1	81.8	89.3	95.5	98.4	91.7
$^{137}\text{Cs}$	97.3	97.6	99.3	99.7	99.9	99.7

Table 3. The decontaminating constants of Korean vermiculite and Dowex 50 W

Decontaminating constant	$K_d$ (ml/g)		
Radioactive isotopes	$^{106}\text{Ru}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$
Korean vermiculite	2.7	69.3	263
Dowex 50 W	2.1	15.4	448

Table 4. Chemical analysis of Korean and foreign vermiculites<sup>2)</sup>

Producing area	Composition	$\text{SiO}_2$	$\text{Al}_2\text{O}_3$	$\text{Fe}_2\text{O}_3$	$\text{MgO}$	$\text{CaO}$	$\text{K}_2\text{O}$	Ig. loss
Suhsan, Chungnam, Korea		35.93	22.24	14.96	2.55	12.10	9.50	2.42
Raleigh, N.C., U.S.A.		33.92	15.31	7.92	22.42	0.05	0.1	20.87
Libby, Montana, U.S.A.		38.68	14.99	9.32	22.64	1.27	7.77	5.31
Kenya, S. Africa		34.04	15.37	8.01	22.58	—	—	19.93

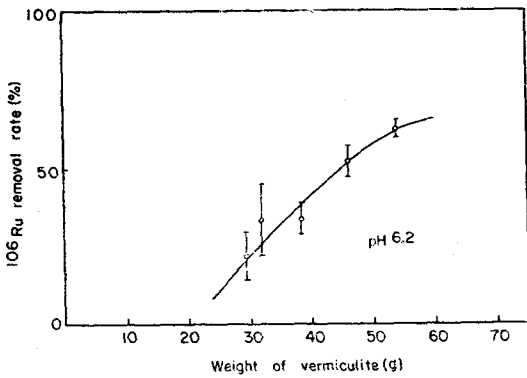


Fig. 1. Removal of ruthenium by vermiculite.

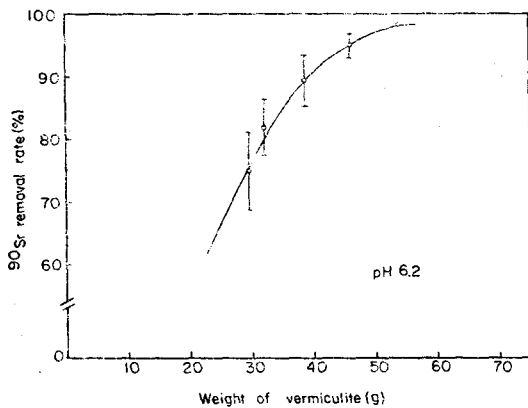


Fig. 2. Removal of strontium by vermiculite.

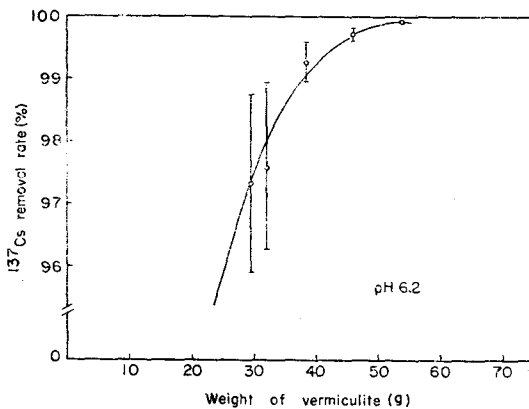


Fig. 3. Removal of cesium by vermiculite.

miculite 인 경우 69.3으로 Dowex 50 W 의 15.4보다 훨씬 높다. 따라서 燒成 vermiculite에 의한  $^{90}\text{Sr}$ 의 除去는 잘 된다.

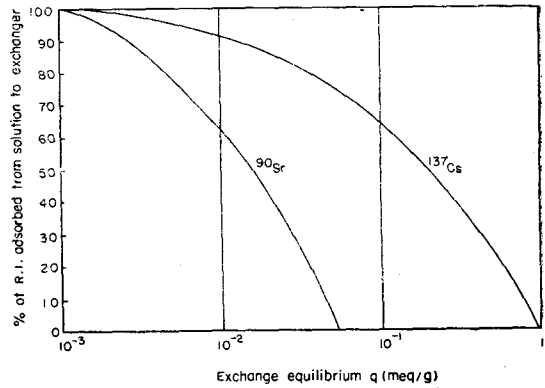


Fig. 4. Adsorption equilibrium curve.

$^{137}\text{Cs}$  除去率을 表 2와 Fig. 3에서 보면, 韓國産 vermiculite의 除去率이 매우 좋고, vermiculite column의 무게가 增加함에 따라 增加하며, Dowex 50 W 과 비슷한 除去率을 나타낸다. 表 3의  $^{137}\text{Cs}$  除去能  $K_d$ 는 vermiculite가 263으로 相當히 높고, 美國産 vermiculite 보다 높다<sup>9)</sup>. 그러나 Dowex 50 W 의 448보다는 낮다. 美國産 보다 나은 理由는, 韓國産 vermiculite 成分中 CaO가 많기 때문에 나타나는 現象일 것으로 推測된다<sup>1)</sup>.

Fig. 4에서 보는 바와 같이  $^{90}\text{Sr}$  과  $^{137}\text{Cs}$  溶液의 交換平衡曲線(exchange equilibrium curve)에서 交換點이  $^{90}\text{Sr}$  溶液에서 0.054(meq/g)  $^{137}\text{Cs}$  溶液에서 0.94(meq/g)로 各各 나타났다. 따라서 韓國産 vermiculite의 放射性物質除去能力이  $^{90}\text{Sr}$  보다  $^{137}\text{Cs}$ 에서 더 좋게 나타났다.

#### IV. 結 論

Ruthenium-106, strontium-90, cesium-137等이 含有된 放射性溶液中的 放射性物質을 除去하기 爲해, Dowex 50 W 이온交換樹脂와 韓國産 燒成 vermiculite를 使用하여 除去實驗을 하여 다음과 같은 結論을 얻었다

Ruthenium-106 除去에 있어, 韓國産 燒成 vermiculite는 比較的 除去가 잘 되며, 燒成 vermiculite 重量 增加와 더불어 除去率도 增加하였으며, Dowex 50 W 와 比較하여 비슷한 除去效果를 나타냈다.

Strontium-90 除去에 있어, 韓國産 燒成 vermiculite는 優秀한 除去效果가 있고, 燒成 vermiculite의 重量 增加와 더불어 除去率도 增加하는 傾向이 있었으며, Dowex 50 W 보다 더 優秀한 除去效果를 나타냈다.

Cesium-137 除去에 있어, 韓國産 燒成 vermiculite는

매우 優秀한 除去效果가 있고, 燒成 vermiculite의 重量增加와 더불어 除去率도 增加하였으며, Dowex 50 W와 비슷한 除去效果가 있음을 나타냈다. 이온交換樹脂보다 價格이 低廉한 韓國產 燒成 vermiculite를 利用하여, 比較的 低位의 放射性廢液處理에 좋은 效果를 얻을 수 있을 것이다<sup>7)</sup>.

### REFERENCES

- 1) D.G. Jacobs: *Cesium Exchange by Vermiculite*. USAEC TID-1628, 28, 2-91, 1962.
- 2) T. Tamura and E.G. Struxness.: *Ore Removal from Waste Water by Ion Exchange with Vermiculite*. *Health Physics*, 9: 697-704, 1963.
- 3) ORNL-3347, *Radioactive Waste Disposal*, *Health Physics Div. Annual Progress Report*, 1962.
- 4) I.A.E.A., *Practices in the treatment of low-and intermediate-level radioactive wastes*, *Proceedings of symposium*. Vienna, 6-10 December, 1965.
- 5) I.A.E.A., *Technical Reports Series No. 78*, *Operation and control of ion-exchange processes for treatment of radioactive wastes*. Vienna, 1967.
- 6) E. Glueckauf.: *Atomic Energy Waste, Its nature, use and disposal*. Butterworths, London, 1961.
- 7) I.C.R.P. *Publication No. 5*, 1964.
- 8) E.K. Lim and H.S. Shim: *Fundamental Studies on Domestic Vermiculite (I)*, *J. Korean Ceramic Society*, Vol. 3, No.2, 165-184, 1966.