

방사성 토양 오염 폐기물 내 점토처리 기술개발

박찬우^{1*}, 김보현^{1,2}, 이근우¹, 양희만¹, 서범경¹, 문제권¹

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 99

*chanwoo@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 시설에서의 비계획적인 방사성 물질의 방출은 주변의 토양의 오염을 유발하게 된다. 원자력 시설의 해체 후 부지의 개방을 위해서는 이러한 오염 토양을 복원하여 개방기준을 만족하여야 한다. 하지만, 방사성 세슘은 토양 내 2 μm 이하의 점토 성분과 강하게 결합하기 때문에, 일반적인 환경복원 기술을 활용하여 세슘을 제거하는데 어려움이 있다.

토양 내 점토 성분 중 illite, mica 등과 같은 비팽창성 점토 내 frayed edge site(FES)는 세슘에 대한 높은 선택성을 갖고 흡착시 안정성이 높다. Smectite 나 vermiculite와 같은 팽창성 점토광물은 층 내부에 많은 양의 세슘을 흡착할 수 있어 점토광물들 중 높은 세슘흡착능을 나타내며, 세슘의 오염농도가 낮아질수록 안정한 inner-sphere complex를 형성하며 흡착강도가 높아진다. 따라서, 극저준위 방사성 토양폐기물에 존재하는 점토의 경우 세슘의 제거가 매우 어렵다. 국내 고리 원전 토양에도 세슘 흡착선택성이 높은 mica와 세슘흡착능이 높은 smectite가 상당량 존재하는 것으로 발표되었다.

후쿠시마 사고 이후 산처리, 이온교환 처리, 열처리 등의 다양한 처리법을 이용하여 점토 내 세슘을 제거하기 위한 연구가 수행되었으나, 세슘의 점토 내 안정한 흡착으로 제거효율이 매우 낮은 한계가 있다. 따라서 점토광물에 흡착된 세슘을 효율적으로 제거하는 탈착기술의 개발이 필요하다.

본 연구에서 전하밀도가 높은 양이온성 고분자 전해질에 의한 점토 내 세슘 탈착 특성을 연구하였다. 다양한 표준 점토광물 및 자연으로부터 채취된 점토의 세슘 흡착특성을 분석하고 이에 따른 탈착 특성을 평가하였다.

2. 본론

2.1 실험

2.1.1 Cs 오염 점토 제조

Ca-montmorillonite (MMT), illite, hydrobioite (interstified clay of biotite/vermiculite)의 점토광물과 고리 주변 토양에서 분리된 20 μm 이하의 성분을 Cs 수용액에 분산시킨 후 1주일 동안 교반한 후, 원심분리를 통해 고/액 분리하였다. 상등액에 존재하는 Cs의 농도를 분석하여 점토 내 Cs 오염 농도를 계산하였다.

2.1.2 양이온성 고분자전해질의 Cs 제거특성 분석

Cs 오염 점토를 양이온성 고분자 전해질인 polydiallyldimethylammonium bromide (PDDA)와 polyethyleneimine (PEI)의 수용액에 분산시킨 후 일정시간 교반하였다. 원심분리를 통해 얻어진 상등액 내의 Cs의 양을 ICP-MS로 분석하여 탈착된 Cs의 양을 계산하였다. 고분자전해질의 대조군으로 tetramethylammonium bromide, HCl, ammonium nitrate 등이 사용되었다.

2.2 결과 및 토의

양이온성 고분자전해질의 점토에 흡착된 Cs과의 교환능력을 평가하기 위해 다양한 농도의 PEI와 ammonium 이온을 Cs-MMT와 반응시킨 후 Cs 탈착 특성을 분석하였다. Fig. 1과 같이 PEI의 농도가 증가함에 따라 Cs의 탈착률이 증가하여 80°C의 처리온도에서 최대 94%의 Cs 제거율을 나타냈다. 하지만, PEI와 같은 농도의 ammonium ion을 처리하였을 경우 Cs 탈착은 매우 적었으며 최대 23%의 세슘만을 제거할 수 있었다. 이는 고분자전해질이 단일 이온형태의 양이온보다 훨씬 높은 세슘탈착능력을 갖는 것을 나타낸다. 양이온성 고분자전해질은 한 분자 내에 많은 양의 양이온이 존재하기 때문에 점토 층 내부에 진입하여 국부적으로 양이온의 농도를 높일 수 있을 뿐 아니라, 층 내부에 흡착된 후

내부를 Cs 이온과 경쟁적인 양이온성 환경으로 전환시켜 탈착된 Cs이 층 내부를 통해 쉽게 빠져나가게 하는 것으로 예상된다.

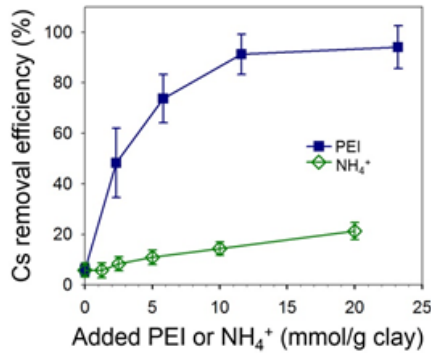


Fig. 1. Desorption of Cs from montmorillonite by adding PEI for one day at 80°C.

양이온성 고분자전해질 종류에 따른 Cs 탈착 특성을 분석하기 위해 PEI와 PDDA 고분자를 다양한 종류의 점토에 처리 한 후 Cs 탈착특성을 분석하였다. PEI는 pH에 따라 이온화도가 변화하지만 PDDA는 pH에 관계없이 일정한 양이온성을 갖기 때문에, PEI의 이온화가 PDDA와 동일하게 극대화 되는 pH 3 조건에서 Cs 탈착을 분석하였다. Fig. 2와 같이 PEI는 montmorillonite와 hydrobiotite에서 높은 Cs 탈착률을 보여주었다. 하지만 PDDA의 경우 montmorillonite에서는 비교적 높은 Cs 제거율을 나타냈지만 hydrobiotite에 대해서는 낮은 탈착률을 나타내었다.

분자량이 높은 PEI의 경우 분자량이 낮은 경우에 비해 Cs 탈착이 증가하였고 이는 낮은 분자량의 고분자가 점토 층 내부로 진입하기 쉽기 때문일 것으로 예상된다.

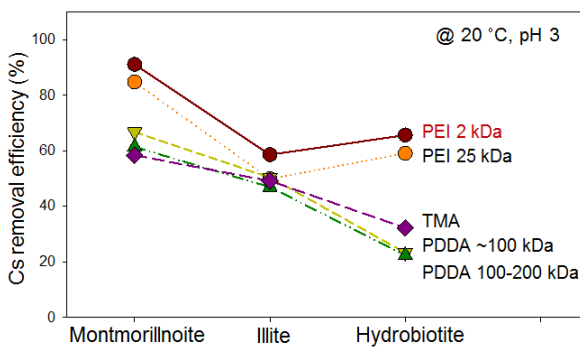


Fig. 2. Desorption of Cs from montmorillonite, illite, and hydrobiotite by adding PEI and PDDA for one day at 20°C.

3. 결론

양이온성 고분자전해질은 단일 양이온인 암모늄 이온에 비해 훨씬 높은 세습제거 능력을 갖는 것으로 확인되었다. 양이온성 고분자전해질은 긴 분자 내에 많은 양의 양이온을 함유하여 높은 charge density를 가지기 때문에 Cs 이온과의 교환이 향상되는 것으로 판단된다. 양이온성 고분자 전해질은 montmorillonite뿐 아니라 hydrobiotite 등의 다양한 점토광물에서도 높은 Cs 제거율을 나타내 오염점토 처리기술로서 높은 적용성을 나타냈다.

4. 참고문헌

- [1] 이강원, 손중권, 김경덕, 김학수, 최영조, 강기두, 신상운 "Soil washing을 이용한 방사능 오염토양 중 Cs 제염특성에 관한 연구", 한국원자력학회 추계학술발표회 논문집 12(2), 37-38, 10.15-17, 2014, 여수.
- [2] B.C. Bostick, M.A. Vairavamurthy, K.G. Karthikeyan, and J. Chorover, "Cesium Adsorption on Clay Minerals: An EXAFS Spectroscopic Investigation", Environ. Sci. Technol. 36, 2670-2676 (2002).
- [3] K. Fukushi and T. Fukiage, "Prediction of Intrinsic Cesium Desorption from Na-Smectite in Mixed Cation Solutions", Environ. Sci. Technol. 49, 10398-405 (2015).