메조다공성 실리카 나노입자 함유 복합유체 제염제의 성능 평가

윤인호[*1], 정종헌[1], 윤석본[2], 김초롱[1], 양한범[1], 문제권[1], 최왕규[1]
[1]한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
[2]한수원㈜중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70
[*]ihyoon@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 시설의 해체 또는 대규모 보수 시, 구조적 적용이 어려운 대형기기 및 대면적 제염을 위해서는 적용이 용이하고 이차폐기물 발생이 최소화되는 제염 기술의 확보가 요구되고 있다[1,2]. 미국, 영국 프랑스 등 해외 주요 원자력 선진국에서는 폐액 저장 탱크와 같은 대형기기 및 사용후 핵연료 저장 풀 등 대면적 오염 표면제염 시 제염의 용이성 및 이차폐기물 발생량 저감화 측면에서 거품(Foam) 제염의 중요성을 인식하고, 연구개발 및 상용화를 추진한 결과 실용화 단계에 올라와있다. 프랑스 CEA에서는 대형기기 제염을 위한 파일럿 규모의 실증시험 설비를 구축하여 거품 생성 및 안정성 평가, 제염 실험 등이 진행되었다. 또한 미국 INL에서는 거품 제염의 개발 및 특허화를 통해 기술이전 하여 실제 대면적 시설에서 실증 실험이 이루어지고 있으나, 국내의 경우 관련 연구가 전무하고, 기반이 매우 취약한 상태에 있다.

이러한 현 상황을 고려하여 거품의 안정성 증진을 통한 제염효율 증대와 이차폐기물의 양을 더욱 저감하고 이차폐기물 처리의 용이성을 증진시키기 위해 나노 크기의 고체입자 및 유체 등을 용매에 균일하게 분산시켜 제염제와 혼합한 나노입자 함유 거품(복합유체) 제염제 개발을 추진하고 있다. 본 연구에서는 나노복합유체 제염제의 안정성을 증가시키기 위해 유기물의 사용을 최대한 줄이고, 기존의 실리카 나노입자의 성능을 증가시키기 위해 메조다공성 실리카 나노입자를 제조하여, 복합유체의 안정성을 평가하였고 RI 시편을 통한 나노복합유체 제염제의 성능을 평가하였다.

2. 본론

2.1 실험

본 실험에서는 복합유체의 제조를 위한 계면활성제로 비이온 계면활성제인 Elotant^{TM} Milcoside 100 (EM 100, LG Household & Health Care)을 사용하였고, 메조다공성 실리카 나노입자를 합성하여 사용하였다[3,4].

거품제염제의 구조 및 안정성을 평가하기 위해 Dynamic Foam Analyzer (DFA-100, KRUSS, Germany)을 사용하여 이미지 분석을 통해 거품 제염제 구조와 안정성 측정을 수행하였다. 생성된 나노복합유체 제염제의 거품의 크기와 수를 측정하여 구조 평가를 하였고, 안정성은 거품양 및 액체 함유량을 통해 평가하였다. 유리 컬럼에 화학제염제와 1% v/v 계면활성제, 다양한 형태의 실리카 나노입자를 포함한 나노복합유체 제염제 용액을 채운 후 가스를 주입하여 거품을 발생시켜 실시간으로 측정하였다.

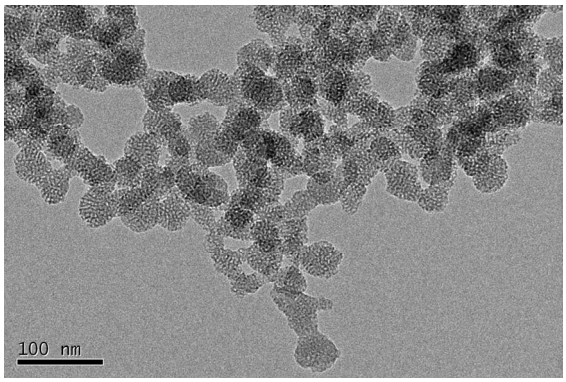

Fig. 1. TEM image of mesoporous silica nanoparticles.

나노복합유체의 제염 성능을 평가하기 위해 20 × 20 × 2 mm SUS 시편 쿠폰의 표면을 연마기로 polishing 하였고, 700℃에서 24 시간동안 열처리하여, 부식산화막을 형성시켰다. 이후 코발트 RI 용액을 시편에 떨어뜨려 100℃에서 5 시간 동안 열처리하여 RI 시편을 준비하였다. 나노복합유체 (50 mL)에 화학제염제인 0.01M HNO_3 (pH=2)에서 1wt.% 다양한 나노입자를 별개의 250 mL의 시험 용기에 넣고, 흔들어서 거품을 생성시키고 부식산화시편이 나노복합유체 제염제에 충분히 접촉할 수 있도록 용기의 가운데에 위치시키고, MCA를 통해 제염 전후의 방사능농도를 측정하여 제염계수를 구하였다[5].

2.2 결과 및 고찰

나노복합유체 제염제의 구조는 생성된 복합유체의 개수 및 크기 변화량을 통하여 평가하였다. 실리카 나노입자를 함유하지 않는 복합유체 제염제는 60 분 후에 모든 거품이 사라지는 것으로 나타났지만, 상용 실리카 나노입자 (M-5, cabosil) 및 메조다공성 실리카 나노입자를 함유한 복합유체는 60 분 동안 거품이 유지 되는 것으로 나타났다. 그리고 메조다공성 실리카 나노입자를 함유한 복합유체의 거품 개수가 가장 많고, 거품의 크기는 작아지는 것으로 나타났다. 또한 메조다공성 실리카를 함유한 복합유체에서 거품사이의 액막 두께는 1 시간 후에도 일정하게 유지되는 것으로 나타났다 (Fig. 2).

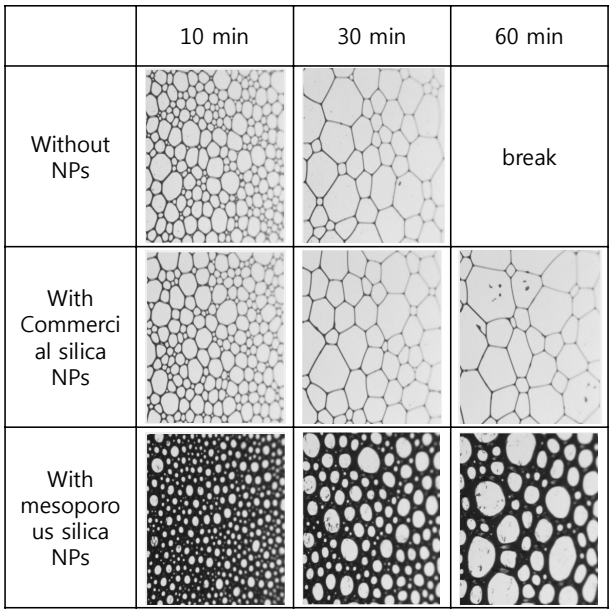

Fig. 2. Foam structures of 1% EM 100 containing 1 wt.% commercial and mesoporous silica NPs at pH 2 for 1 hr.

RI 오염 시편을 통한 복합유체의 제염 성능평가 실험에서는 1% EM100 계면활성제만 포함된 복합유체와 1wt.%의 다양한 실리카 나노입자를 포함한 나노복합유체를 사용하여 제염 전후의 방사능 농도를 통해 제염계수를 비교분석하였다. 실험결과를 통해, 메조다공성 실리카를 함유한 복합유체에서 제염계수가 가장 높은 것으로 나타났고, 다음으로 상용 실리카 함유 복합유체 제염제, 계면활성제만 포함한 복합유체 제염제 순으로 제염계수가 낮아지는 것으로 나타났다. 본 결과를 통해 메조다공성 실리카 나노입자를 첨가함에 따라 거품액막의 두께가 증가하고 유지되면서, RI 오염 시편과 접촉하는 시간이 증가함에 따라 제염계수가 증가하는 것으로 사료된다.

3. 결론

본 연구에서는 새로운 나노복합유체 제염제를 개발하기 위해 다양한 형태의 실리카 나노입자를 제조하여 나노복합유체 안정성과 거품구조, 제염 성능 평가를 수행하였다. 다양한 형태의 실리카 나노입자의 첨가에 기인하여 복합유체의 안정성이 증가하는 것으로 나타났고, 특히 메조다공성 실리카 나노입자를 사용한 경우 복합유체의 거품액막 두께가 가장 높게 나타났다. 또한 나노복합유체의 거품 액막 두께가 증가할수록, RI 오염시편과 접촉하는 화학제염제의 양 및 접촉시간이 증가하면서 제염계수가 증가함을 확인하였다.

4. 감사의 글

이 논문은 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구입니다.

5. 참고문헌

[1] C. Dame, et al., Colloids Surf., A, 263 210-218 (2005).
[2] L. Nunez, and M. Kaminski, US Patent 7,166,758 B2 (2007).
[3] S.B. Yoon, et al., Asian J. Chem., 26, 1401-1404 (2014).
[4] I.-H. Yoon, et al., Asian J. Chem., 26, 1405-1407 (2014).
[5] I.-H. Yoon, et al., Ann. Nucl. Energy 73, 168-174 (2014).