

## 유-무기 이온교환제를 이용한 방사성 세탁폐액 내 방사성핵종의 처리

정인식, 신원식, 최상준  
경북대학교, 대구광역시 북구 산격동 1370번지  
sigi3737@knu.ac.kr

### 1. 서론

원자력 산업에서 근무하는 작업자의 작업복을 세탁하는 과정에서 발생하는 폐액 중에는 저농도의 방사성 핵종인 코발트-60, 스트론튬-90, 세슘-137이 함께 배출된다. 과거에는 방사성핵종을 처리하기 위해 증발법을 사용해 왔으나 최근에는 이온교환법에 관한 연구가 국내·외에서 활발히 진행되고 있다. 또한 비용절감과 처리된 흡착제로 인한 2차 폐기물의 부피를 줄이기위해 흡착제의 재이용기술에 대해서도 관심이 집중되고 있다. 무기 이온교환제는 방사성핵종에 대한 높은 선택성과 열에 대한 안전성으로 많이 사용되고 있으나, 물질의 비결정성과 물리적인 힘에 약한 특성때문에 칼릴실험에 대한 사용이 극히 제한되고 있다. 이에 무기 이온교환제를 유기물인 PAN(polyacrylonitrile) 지지체에 고정시킨 유-무기 이온교환제가 개발된바 있다(Moon et al., 2000). 본 연구에서는 방사성 핵종의 처리효율을 높이기 위해 코발트와 세슘에 높은 친화력을 가지고 있는 HMO(hydrous manganese oxide)와 KNiFC(potassium nickel ferrocyanide)를 질량비 1:1로 PAN과 중합시킨 비드형태의 NM(KNiFC and HMO)-PAN을 합성하여 방사성 핵종에 대한 선택적인 흡착능력을 평가하였으며, 흡착-탈착 연속실험을 통해 흡착제의 재이용에 대한 연구를 수행하였다.

### 2. 실험방법 및 결과

본 연구에 사용된 NM-PAN은 1~2mm 크기의 비드형태로 사용하였으며, 흡착실험의 전처리 단계로 0.05M MES(2-[morpholino]ethanesulfonic acid) buffer로 수차례에 걸쳐 세척하여 흡착제의 pH를 5로 조절한 후 사용하였다. 흡착제의 양은 코발트와 스트론튬은 0.5g, 세슘은 0.2g으로 고정하였으며 방사성 핵종의 농도는 1~20mM로 제조하였다. 흡착실험은 15mL conical tube를 이용해 상온에서 200rpm으로 24시간 동안 교반하였다. 모든 실험은 회분식으로 진행되었으며, 흡착처리 후 상등액을 0.2 $\mu$ m Membrane Filter를 이용하여 여과시킨 후 ICP-OES(PerkinElmer, Optima 2100DV)로 분석하였다. 흡착실험 결과는 Langmuir model과 Freundlich model로 fitting 하였다. 재생실험은 20mM의 방사성 핵종 용액으로 수행하였으며, 탈착액은 1, 3, 5N HCl을 사용하였다. 흡착-탈착-흡착 연속실험은 3회 반복수행 하였다.

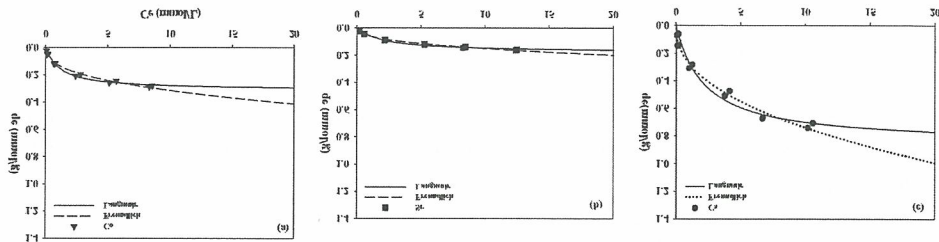


Fig. 1. Single-solute adsorption isotherm of (a)Co, (b)Sr, and (c)Cs onto NM-PAN

NM-PAN에 대한 코발트, 스트론튬, 세슘의 등온흡착 실험결과를 Langmuir 모델과 Freundlich 모델로 fitting한 결과를 Fig. 1과 Table 1에 나타내었다. Langmuir 모델로 fitting 하였을 때 코발트의 최대흡착량은 0.31mmol/g, 스트론튬의 최대흡착량은 0.18mmol/g, 세슘의 최대흡착량은 0.86mmol/g로 각각 나타났다. NM-PAN은 세슘에 대해 다른 핵종들보다 높은 흡착율을 보였는데, 이는 NM-PAN에서 KNiFC에 존재하는 칼륨이 세슘과 이온교환되어 나타난 결과로 판단된다. 또한 코발트는 HMO 내에 있는 망간과 치환되었다.

Table 1. The parameters of adsorption isotherm for Co, Sr, and Cs onto NM-PAN

	Langmuir			Freundlich		
	$q$ (mmol/g)	$b$ (L/mmol)	$R^2$	$K_f[(\text{mmol/g})/(\text{mmol/L})^{-N}]$	$b$ (L/mmol)	$R^2$
$\text{Co}^{2+}$	$0.3126 \pm 0.0140$	$0.8679 \pm 0.1432$	0.9941	$0.3126 \pm 0.0140$	$0.8679 \pm 0.1432$	0.9939
$\text{Sr}^{2+}$	$0.1773 \pm 0.0077$	$0.5013 \pm 0.0783$	0.9954	$0.1773 \pm 0.0077$	$0.5013 \pm 0.0783$	0.9982
$\text{Cs}^+$	$0.8556 \pm 0.0694$	$0.4580 \pm 0.1226$	0.9881	$0.8556 \pm 0.0694$	$0.4580 \pm 0.1226$	0.9937

탈착액 1N HCl를 사용하여 흡착-탈착-재흡착 실험을 3회 반복수행한 결과, 코발트, 스트론튬, 세슘의 재흡착율은 45%, 59%, 38%로 나타났으며, 3N HCl의 경우, 27%, 35%, 17%였으며 5N HCl의 경우에는 24%, 32%, 7%를 보였다. 탈착액인 HCl의 농도가 높아질수록 흡착-탈착 반복횟수가 늘어날수록 NM-PAN의 재흡착 능력은 점점 감소하는 것으로 나타났다. 이는 탈착과정에서 고농도의 HCl로 인해 흡착제의 구조가 파괴되어 흡착능력이 감소한 것으로 판단된다(Jeon and Park, 2007).

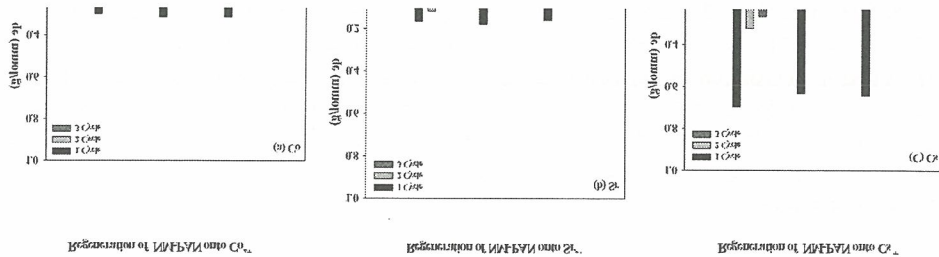


Fig. 2. Regeneration of NM-PAN using 1N, 3N, 5N HCl

3. 결론

Co, Sr, Cs의 흡착에 있어 NM-PAN은 무기 이온교환제인 KNiFC의 칼륨이 세슘과 이온교환 되어 세슘에 대한 선택성이 높게 나타났다. 흡착제의 재생실험결과 탈착액 1N, 3N, 5N HCl에 대해 세 핵종 모두 낮은 재흡착율을 나타내었으며 흡착율을 높이기 위해서 보다 낮은 농도의 HCl을 사용하거나 다른 종류의 탈착액을 이용한 추가 재생실험이 필요하다고 판단된다.

참고문헌

[1] Gadde, R. R. and Laitine, H. A (1974): Studies of heavy metal adsorption by hydrous iron and manganese oxides, J. Anal. Chem., 46, 2022-2026.  
 [2] Mimura, H (1997). Chemical and thermal stability of potassium nickel hexacyanoferrate(II), J. Nucl. Sci. Technol, 34, 582-587.  
 [3] J-K. Moon, K-W. Kim, C-H. Jung, Y-G. Shul, and E-H, Lee (2000): Preparation of organic-inorganic composite adsorbent beads for removal of radionuclides and heavy metal ions, J. Radio. Nucl. Chem. 246, 299-307.  
 [4] C. Jeon and K-H. Park (2007): Desorption and regeneration characteristics of heavy metals adsorbed onto magnetically modified alginate, J. Ind. Eng. Chem. 13, 669-673.

사사

본 연구는 한국연구재단(교육과학기술부)의 원자력연구개발사업 고유강점기술육성의 일환으로 수행되었습니다(M20706000036-07M0600-03610). 또한 이 논문은 2009년도 환경부의 환경기술인력양성지원사업으로 지원되었습니다.