

해수 및 담수 조건의 ^{137}Cs 오염수를 처리하기 위한 기능성 제올라이트 합성 및 특성 연구

김지민^{1,2}, 이근영¹, 이일희¹, 김광욱¹, 정동용¹, 문제권¹, 현재혁^{2*}

¹한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

²충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 99번길

*jayhh@cnu.ac.kr

1. 서론

동 일본 쓰나미로 인한 후쿠시마 원전 사고 당시 냉각수로써 사용된 해수 및 담수가 방사성원소로 오염되어 대용량의 방사성 폐액이 발생하였다. 일본에서는 발생 폐액으로부터 방사성핵종을 제거하기 위한 처리 공정을 현재까지 가동 중에 있다. 우리나라는 에너지 수급에 있어 원자력 시설의 의존도가 30% 정도로 높은 수준이기에 비정상 원전 사고에 대한 철저한 대비가 요구된다.

본 연구에서는 비정상 원전 사고 시 발생할 수 있는 Cs 오염수를 대상으로 흡착(adsorption) 처리 기술에 적용 가능한 최적 물질의 합성 및 Cs 제염 효율 평가를 목표로 하고 있으며, Cs를 선택적으로 제거하는 zeolite와 metal ferrocyanide 물질들이 갖는 단점을 상호 보완하기 위한 복합체를 합성하고, 합성 방법을 개선하고자 하였다.

2. 본론

2.1 흡착제 합성 및 물성분석

본 실험을 위하여 사전 문헌연구와 기초실험을 통해 ^{137}Cs 흡착에 매우 탁월한 potassium cobalt (II) ferrocyanide(PCFC)를 chabazite(CHa)에 합침 시켜 복합 흡착제(CHa-PCFC)를 합성하였고, 합성 과정 중 증류수 또는 아세톤을 이용한 세척 과정을 반복하였다. 합성된 흡착제는 에너지분광분석(EDS)를 통하여 구성 성분을 분석하였고, 주사전자현미경(SEM)을 이용하여 입자 형태를 확인하였으며, X선 회절 분석(XRD)을 통해 광물상 분석을 수행하였다.

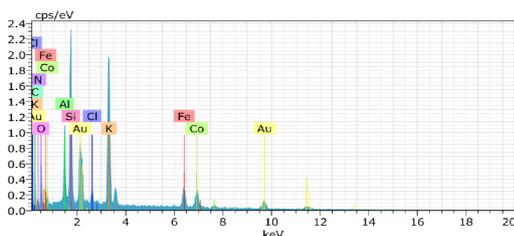


Fig. 1. EDS result of synthesized CHa-PCFC.

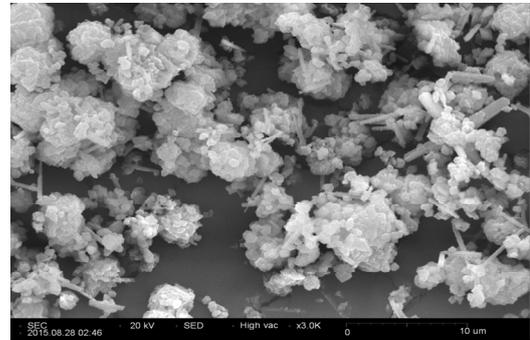


Fig. 2. SEM image of synthesized CHa-PCFC.

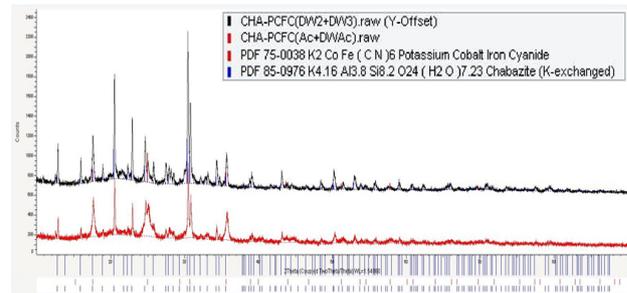


Fig. 3. XRD peak of synthesized CHa-PCFC.

2.2 흡착실험

합성 과정에서 세척 용액 및 세척 횟수에 변수를 두고 얻어진 흡착제들을 이용하여 Cs 흡착 실험을 진행하였다. 흡착 실험은 2 시간 동안 교반시킨 후 채취한 용액 내 Cs 농도를 분석하여 흡착 효율(adsorption yield, %)을 계산하였으며, 용액 내 Cs 농도를 분석하기 위하여 Atomic Absorption Spectrometer 또는 Multichannel Analyzer를 이용하여 정량하였다.

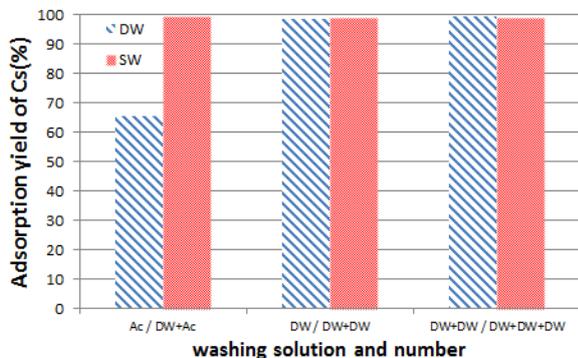
2.3 결과 및 토의

합성한 복합 흡착제의 EDS 분석 결과 CHa-PCFC는 chabazite 내 Si, Al 성분이 PCFC 구성 성분인 Co, Fe 등과 함께 존재함을 확인하였고 (Fig. 1), XRD 분석 결과 또한 potassium chabazite와 potassium cobalt ferrocyanide가 시료에 공존하고 있음을 확인하였다 (Fig. 3). 이를 통해 CHa-PCFC가 성공적으로 합성되었다는 사실을 알 수 있었다.

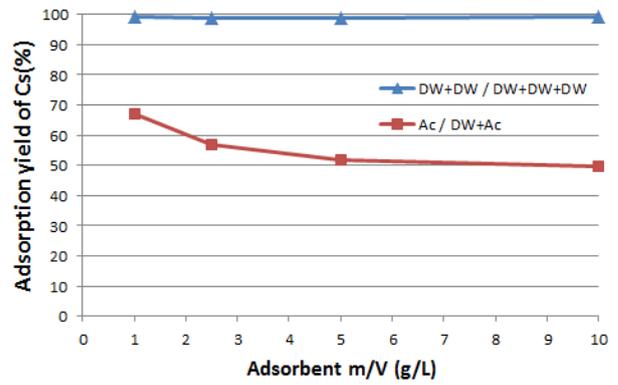
세척방법에 따라 흡착제의 PCFC 함유량이 달라진다. Fig. 4는 CHA-PCFC를 합성하는 과정에서 세척방법에 따라 얻어진 흡착제의 Cs 흡착 효율을 비교한 결과로서, 해수 조건에서의 Cs 흡착 효율은 서로 유사한 수준의 제거효율($m/V=1$ 에서 99%)을 보였지만, 담수 조건에서는 아세톤을 이용하였을 때($m/V=1$ 에서 66%)보다 증류수만을 이용하여 세척하였을 때 얻어진 흡착제가 높은 제거효율($m/V=1$ 에서 99%)을 보인다. 또한, 다양한 m/V 비에 따른 제거효율을 비교한 결과에서 아세톤을 이용하여 세척하였을 때, m/V 의 비가 증가할수록 제거효율이 감소하는 것을 알 수 있다. 이러한 사실은 CHA-PCFC 합성 후 Cs 흡착 제거를 위해 오염수를 처리하는 동안 흡착제로부터 Cs을 이미 흡착한 나노 크기의 PCFC 입자가 액상으로 분리되어 고액분리 효율이 감소하면서 Cs 제거효율에 영향을 미친 것으로 보인다.

세척 용액으로 증류수를 사용하고, 세척 횟수를 변화시킨 경우는 해수와 담수 두 조건 모두 흡착 효율은 서로 유사한 수준($m/V=1$ 에서 99%)으로 나타나지만, 세척 횟수를 증가시켜 줌으로써 CHA-PCFC에 비교적 불안정한 상태로 합성된 PCFC가 상당 부분 제거된 것으로 생각된다. 이를 통해 합성 과정에서 증류수를 이용한 충분한 세척이 필요함을 확인하였다.

PCFC는 Cs의 선택적 흡착에 매우 높은 효율을 갖지만, 입자가 작아 고액분리가 어렵다는 문제로 단독으로 적용하기에 어려움이 있다. 따라서 CHA-PCFC 형태의 복합체를 통해 입자크기를 조절할 수 있고, 합성 과정에서 불안정한 형태의 PCFC의 제거시킴으로써 상호보완 효과의 향상을 기대할 수 있다.



(A) ^{137}Cs removal % ($m/V=1\text{g/L}$, in DI water and Seawater)



(B) ^{137}Cs removal % ($m/V=1\sim 10\text{g/L}$, in DI water)

Fig. 4. ^{137}Cs adsorption yield % of various washing methods.

3. 결론

복합 흡착제 합성 과정에서 증류수를 이용한 세척 및 세척 횟수의 증가를 통해 해수 및 담수 조건에서 사용 가능한 흡착제 합성이 가능했다. ^{137}Cs 의 선택적 흡착에 의한 높은 제거효율을 유지하면서, 고액분리 효율을 개선할 수 있어 방사성 Cs 오염수 처리를 위한 CHA-PCFC 흡착제의 적용 가능성을 확인하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력 연구개발 중장기 계획 사업 일환으로 수행된 연구결과입니다.

5. 참고문헌

- [1] 이근영, 박민성, 이일희, 김광욱, 정동용, 문제권, "Cs 오염수 처리를 위한 hybrid 흡착제의 합성과 특성 연구", 한국방사성폐기물 학회 2014 춘계학술발표회 논문요약집, 12(1), 243-244, 5.7~9, 2014, 평창.
- [2] H. Mimura, M. Kimura, K. Akiba, Y. Onodera, "Selective Removal of Cesium from Sodium Nitrate Solutions by Potassium Nickel Hexacyanoferrate Loaded Chabazites", Separation Science and Technology, 34(1), 17-28, (1999).