

# <sup>137</sup>Cs 오염수를 처리하기 위한 기능성 제올라이트 합성 및 특성 연구

김지민<sup>1,2</sup>, 이근영<sup>1\*</sup>, 오맹교<sup>1</sup>, 김광욱<sup>1</sup>, 이일희<sup>1</sup>, 정동용<sup>1</sup>, 문제권<sup>1</sup>, 현재혁<sup>2</sup>

<sup>1</sup>한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

<sup>2</sup>충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 99번길

\*lky@kaeri.re.kr

## 1. 서론

오늘날 에너지 수급에 있어 의존도가 높은 원자력 시설을 통해 매우 다양한 종류의 방사성원소가 발생 할 수 있다. 또한 후쿠시마 원전 사고와 같이 비정상 원전사고가 발생한다면 대량의 방사성 폐기물이 발생하게 되고, 특히 비방사능이 높고 반감기가 길어 주요 핵종으로 연구되고 있는 <sup>137</sup>Cs의 경우 주변 환경오염을 최소화 시킬 수 있는 효과적인 처리기술 개발이 요구된다.

본 연구는 <sup>137</sup>Cs 오염수를 대상으로 흡착(adsorption) 처리 기술에 적용 가능한 복합 흡착제의 합성을 목표로 하고 있으며, Cs을 선택적으로 흡착·제거하는 zeolite를 골격으로 metal ferrocyanide를 함침시켜 복합 흡착제를 합성함으로써 상호 보완 효과를 기대하고 있다. 이런 복합 흡착제를 합성할 때 metal ferrocyanide를 안정적으로 함침시키는 것을 목표로 합성 방법을 개선하고자 하였다.

## 2. 본론

### 2.1 흡착제 합성

본 실험에서는 사전 문헌연구와 기초실험을 통해 zeolite 중 Cs 흡착에 대한 선택성이 있다고 알려진 Chabazite(CHA)에 Potassium Cobalt(II) Ferrocyanide(PCFC)를 함침시켜 복합 흡착제(PCFC-CHA)를 합성하였다. PCFC-CHA의 골격 역할을 하는 CHA의 순도를 높이기 위해 지난 연구를 통해 밝혀진 방법에 따라 zeolite Y를 이용하여 합성(nano-CHA)하였으며, 이를 PCFC-nano, CHA(PCFC-nCHA) 합성에 적용하였다. 또한, CHA 합성에서 반응온도 및 반응시간을 조절하여 기존의 물질보다 입자크기를 크게 합성(micro-CHA)하여 PCFC-micro, CHA(PCFC-mCHA)에 적용하였으며 기존의 복합 흡착제(PCFC-nCHA)와 비교 평가를 수행하였다.

### 2.2 물성분석

합성된 PCFC-CHA는 X선 회절 분석(XRD)를 통해 광물상을 분석하였으며, 에너지분광분석(EDS)를 통하여 구성성분 분석을 수행하였다.

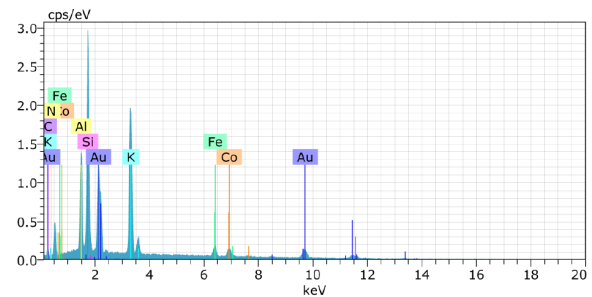


Fig. 1. EDS result of synthesized PCFC-mCHA.

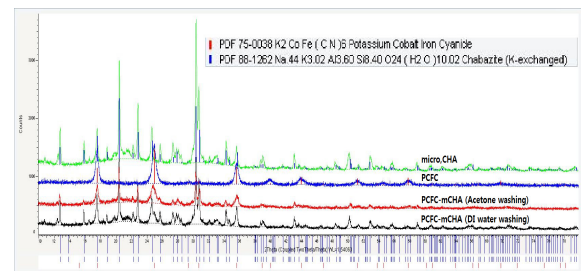


Fig. 2. XRD peak of synthesized PCFC-mCHA.

### 2.3 흡착실험

본 연구에서 모든 실험은 모의 방사성 폐수 (Simulated Radioactive Wastewater, SRW)를 사용하여 수행되었으며, SRW 내 Cs 농도가 1 mg/L가 되도록 설정하고 방사성동위원소(<sup>137</sup>Cs)를 3.7×10<sup>2</sup> Bq/mL에 해당하도록 추적자 규모로 첨가하여 시료 분석 및 거동을 평가하였다.

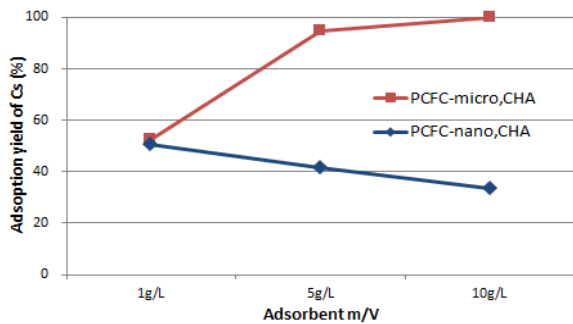
흡착 실험은 흡착제를 주입하고 2 시간 동안 교반 시킨 용액을 Membrane filter(0.2 μm)를 통해 고-액 분리하였으며, 일정량을 취하여 Multi-Channel Analyzer를 통해 정량하고, 분석된 결과를 통해 흡착 효율(adsorption yield, %)를 계산하였다.

### 2.4 결과 및 토의

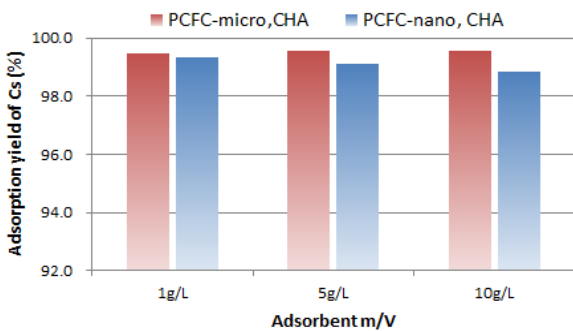
EDS 분석 결과(Fig. 1) 및 XRD 분석 결과(Fig.

2)를 통해 CHA에 해당하는 peak와 PCFC에 해당하는 peak가 공존함을 확인하고, PCFC-CHA가 성공적으로 합성되었음을 확인하였다.

PCFC-CHA는 합성 과정에서 세척횟수 및 세척용액에 따라 CHA에 함침되는 PCFC 양이 달라진다. 지난 연구를 통해 PCFC-nCHA에서 Acetone를 이용하여 세척한 흡착제는 PCFC 함침량이 약 36%로, DI water를 이용하여 세척한 흡착제보다 함침량이 약 3배 높다는 것을 확인하였다. 다양한 방법으로 합성한 PCFC-nCHA의 Cs의 흡착-제거에 있어 세척액의 영향을 평가하였을 때, 해수 조건에서는 세척액에 상관없이 흡착효율이 유사한 수준(m/V=1 g/L에서 99% 이상)이지만 담수 환경에서 Acetone 세척을 하였을 때 불안정한 상태로 합성된 PCFC의 입자가 미립자 형태로 액상으로 분리되어 고-액 분리의 효율이 저하되면서 흡착효율에 영향(m/V=10 g/L에서 33.4%)을 주었다.



(A) Acetone washing



(B) DI water washing

Fig. 3. <sup>137</sup>Cs adsorption yield % of various washing methods (m/V=1~10g/L, in DI water).

Fig. 3은 PCFC-nCHA 및 PCFC-mCHA의 흡착 효율을 비교한 결과이다. nano,CHA를 사용하여 Acetone 세척을 통해 합성한 흡착제는 담수 조건에서 미립자 문제로 m/V가 증가됨에 따라 흡착효율이 감소되는 것이 두드러진다. 지난 연구에서는 미립자 문제를 야기하는 불안정하게 합성되는 입자들을 제어하기 위해 세척 과정에서 DI water세척

을 적용하였으며, 담수 및 해수 조건에서 모두 사용가능하다고 판단되었다. 하지만 면밀히 분석하였을 때, DI water 세척을 적용한 PCFC-nCHA에서도 미립자 문제가 발생하는 것으로 분석되었다.

PCFC-mCHA의 흡착효율을 분석하였을 때, Acetone 세척을 사용한 경우 및 DI water 세척을 사용한 경우 모두 m/V의 증가에 따라 흡착효율이 증가하였다. 이를 통해 PCFC-CHA의 골격 역할을 하는 CHA를 nano,CHA를 사용하였을 때보다 상대적으로 입자크기가 큰 micro,CHA를 사용하였을 때 PCFC가 안정적으로 침착된다는 사실을 확인하였다.

### 3. 결론

PCFC는 Cs의 선택적 흡착에 매우 높은 효율을 갖지만, 입자크기가 작다는 문제로 단독으로 적용하기에 어렵다. 따라서 CHA를 골격으로 PCFC를 함침시켜 합성한 PCFC-CHA를 통해 입자크기 조절 및 상호보완 효과를 기대할 수 있다.

PCFC-CHA의 합성에서 기본 골격이 되는 CHA의 입자 크기가 커질수록 PCFC를 비교적 안정한 형태로 CHA에 침착시킬 수 있다는 사실을 알 수 있었다.

### 4. 감사의 글

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

### 5. 참고문헌

- [1] K.Y. Lee, K.W. Kim, M.S. Park, J.M. Kim, M.G. Oh, E.H. Lee, D.Y. Chung, J.K. Moon, "Novel application of nanozeolite for radioactive cesium removal from high-salt wastewater", *Water Research*, 95, 134-141 (2016).
- [2] 김지민, 이근영, 이일희, 김광욱, 정동용, 문재권, 현재혁, "해수 및 담수 조건의 <sup>137</sup>Cs 오염수를 처리하기 위한 기능성 제올라이트 합성 및 특성 연구", 한국방사성폐기물학회 2015 춘계학술발표회 논문요약집, 13(2), 403-404, 10.16~16, 2015, 부산.