

방사성 액체 폐기물 내 우라늄 흡착에 대한 활성탄의 표면 처리 영향

장재덕* · 이근우 · 송기찬 · 강 호* · 오원진

한국원자력연구소
*충남대학교 환경공학과

(1999년 12월 7일 접수, 2000년 2월 18일 채택)

Effect of Surface-Modification of Activated Carbon for Adsorption of Uranium in Radioactive Liquid Wastes

J. D. Jang* · K. W. Lee · K. C. Song · H. Kang* · W. Z. Oh

*Korea Atomic Energy Research Institute
Dept. of Envir. Eng., Chungnam National University

ABSTRACT

Adsorption characteristics of uranium on activated carbon whose surface is modified with HNO_3 and/or NaOH were investigated. Na-OAC, which was the activated carbon treated with both HNO_3 and NaOH , showed higher adsorption capacity than OAC, which was treated with HNO_3 , as well as Na-AC, which was treated with only NaOH . This can be explained based on the surface functional groups increased by surface modification of activated carbon and the change of solution pH as adsorption proceeds. From these experimental results, it is thought that the pH of uranium solution and surface functional groups on the activated carbon surface are the governing factors in the uranium adsorption system.

Key Words : Activated Carbon, Surface Modification, Adsorption, Uranium Liquid Radwaste

요 약 문

HNO_3 및 NaOH 용액으로 표면 처리한 활성탄을 이용하여 방사성 액체 폐기물 내에 잔존하는 우라늄의 흡착 특성을 조사하였다. HNO_3 처리후 NaOH 로 처리한 활성탄(Na-OAC)은 HNO_3 만으로 처리한 활성탄(OAC)과 NaOH 만으로 처리한 활성탄(Na-AC)에 비해 우수한 우라늄 흡착 성능을 나타내었다. 이와 같은 현상을 활성탄의 표면처리에 의한 표면 관능기 증가 및 용액의 pH 상승에 따른 효과로 설명할 수 있다. 따라서, HNO_3 및 NaOH 용액을 이용하여 표면 처리한 활성탄을 이용한 우라늄 흡착 제거 공정에서는 용액 pH와 표면 처리에 의해 형성된 표면 관능기가 흡착 성능을 좌우하는 중요한 인자임을 알 수 있다.

주제어 : 활성탄, 표면처리, 흡착, 우라늄, 방사성 액체폐기물

1. 서 론

핵연료 주기 공정으로부터 발생되는 액체 방사성 폐기물 내에 존재하는 우라늄은 α -방사선을 방출하는 금속 이온으로, 환경에 노출되면 호흡이나 음식물 섭취 등을 통해 인체에 유입되어 관련 시설 작업 종사자 및 일반인에게 방사선에 의한 위해를 가하게 된다. 우라늄은 반감기가 길고 방사성 위해 지수가 타 핵종에 비해 커서, 방사성 폐기물 처리 및 처분의 관점에서 세심한 주의를 요한다.¹⁾ 따라서 방사성 액체 폐기물 내에 존재하는 우라늄을 효율적으로 분리 제거한다면 인간과 환경에 미칠 수 있는 영향을 최소화하여 핵연료 주기의 환경 친화적 요소를 극대화할 수 있다.

수용액 상에서 우라늄 등의 금속 이온을 제거하기 위해 일반적으로 중화 또는 금속 수화물로 침전시키는 방법 등을 고려할 수 있다. 그러나 핵연료 주기로부터 발생하는 액체 폐기물 내에 잔존하는 우라늄은 핵연료 주기 공정 특성상 산성 분위기에 존재하므로 침전을 이용한 방법에는 불리한 점이 있다. 이에 따라 핵연료 주기 시설에서 발생하는 액체 방사성 폐기물 내에 존재하는 잔류 우라늄의 제거를 위해서는 이온 교환 수지를 많이 사용하고 있다. 이온 교환 수지는 우라늄 제거 공정 상에서 방사선에 노출되었을 때 분해되거나 열화되는 단점이 있으며, 사용 후 고화 처리할 경우 팽창과 수축이 반복적으로 일어나서 방사성 핵종의 용출 가능성이 높아 처리와 처분에도 많은 어려움이 있다.

유기물이나 중금속의 제거에 널리 사용되어온 활성탄(AC , activated carbon)은 화학적, 방사선적, 열적 안정성이 높으며 다른 합성 물질에 비해 견고한 기공 구조와 기계적 강도 등의 측면에서 장점이 있다. 활성탄은 이온 교환 수지에 비하여 폐기물 처리(고화 처리)도 용이하고, 공정의 유지보수 비용 측면에서도 1/10 정도로 저렴하다. 따라서 활성탄을 이용하여 방사성 액체 폐기물 내에 잔존하는 우라늄을 제거하고자 하였다. 그러나 이온 교환 수지에 비해 많은 장점이 있음에도 불구하고 활성탄은 수용액 상의 중금속^{2,3)}이나 방사성 핵종^{4,5)}의 흡착 제거에 많이 이용되지 못하였다. 수용액 상에서 우라늄 이온에 대한 활성탄의 흡착능이 크지 못함이 우라늄 용액에서 흡착 속도를 조사한 Goodrich⁶⁾를 통해서 보고되었으며, 우라늄 이온에 대한 낮은 흡착능으로 인하여 활성탄이 방사성 액체 폐기물 처리 공정에 효과적으로 적용되지 못하고 있다.⁷⁾ 활성탄을 이용하여 우라늄을 포함한 금속 이온을 흡착 제거하고자 할 때에는 활성탄의 기공구조, 비표면적, 기공 분포와 같은 물리적인 성질보다는 수용액 내에서 이온의 농도, 혹은 용액의 pH 등에 영향을 받는다. 특히 활성탄 표면에 형성된 표면 관능기에 의한 화학적 특성이 활성탄의 흡착능에 가장 큰 영향을 미치는 것으로 알려져 있다.⁸⁻¹⁰⁾ 이러한 관점에서 우라늄에 대한 활성탄의 흡착능을 향상시키기 위한 많은 노력들이 있었다.¹¹⁾

활성탄의 화학적 특성은 활성화 과정에서 온도나 기타 결합 원소들에 의해 결정되는데, 인위적인 강

산, 강염기로 표면 처리하여 화학적 특성을 변화시키고자 하였다. 표면 처리 방법에 따라 활성탄 표면의 산도, 염기도 등이 변화하여 흡착 과정에서 수용액의 pH 변화가 다양하게 나타난다.¹²⁾ 또한 수용액 상의 우라늄 이온은 농도와 pH 변화에 따라 다양한 형태로 존재하게 된다.¹³⁾

따라서 본 연구는 우라늄에 대한 활성탄의 흡착능을 향상시키기 위한 표면 처리 방법에 따른 활성탄의 화학적 특성 변화와 수용액 상의 pH 변화에 따른 우라늄의 흡착 특성에 대하여 실험적으로 고찰하였다.

2. 이 론

수용액 상에서 고상 흡착제에 의한 흡착이 진행되어 평형 상태에 도달하게 되면, 두 상 사이에 흡착질이 분포하게 된다. 이 흡착질의 농도 분포를 표현하는 식이 등은 평형 흡착식이며, 이와 같은 등은 평형 흡착식은 흡착능 평가를 통한 적정 흡착제 선정 등 흡착 공정의 타당성을 평가하는데 이용할 수 있다. 일반적인 등은 평형 흡착식으로 Langmuir isotherm과 Freundlich isotherm을 들 수 있다.

2.1. Langmuir Isotherm

Langmuir isotherm은 기상 흡착 결과를 설명하기 위해 유도되었으며, 다음과 같은 가정을 근거로 한다.

- 흡착 이온이 이상적이다.
- 흡착층은 단층 구조(monolayer)이다.
- 흡착 표면은 균질(homogeneous)하다
- 흡착된 이온들 사이에는 상호 작용이 없다.
- 흡착된 물질은 표면에 고정되어 있다.

Langmuir isotherm은 다음과 같이 표현된다.

$$\theta = \frac{q}{q_m} = \frac{BC}{1+BC} \quad (1)$$

여기서, q_m : 단분자층 최대 흡착 용량 (mg/g)

C : 용액 내의 흡착질의 평형 농도 (mg/l)

q : 흡착제 단위 무게당 흡착된 흡착질의 양 (mg/g)

B : Langmuir 상수

2.2. Freundlich Isotherm

Freundlich isotherm은 실험적 결과를 토대로 얻어진 식으로 다음과 같이 표현된다.

$$q = K C^{\frac{1}{n}} \quad (2)$$

여기서, q : 흡착제 단위 무게당 흡착된 흡착질의 양(mg/g)

C : 용액 내의 흡착질의 평형 농도 (mg/l)

K 및 n : 흡착제, 흡착 물질 및 온도 등과 관계되는 실험상수

이 식은 흡착량이 흡착제의 흡착 용량에 비해 훨씬 작아 Henry식으로 표시될 수 있는 경우나 흡착질의 농도가 매우 높아 흡착 site가 포화되고 흡착 피복률이 1.0이 되는 조건에서는 잘 맞지 않는다. 이는 식 자체가 농도 증가에 따라 흡착량이 무한대로 증가하는, 즉 흡착능에 제한이 없기 때문이다.

3. 실험

3.1. 실험 재료

본 실험에서는 국내의 H(주)에서 제조한 활성탄을 325~500 mesh 크기로 체 분리하여 사용하였다. 체 분리한 활성탄 내의 불순물을 제거하기 위해 초순수를 이용하여 충분히 세척한 후 105℃에서 24시간 이상 건조하여 실온에서 데시게이터에 보관하였다. 실험에 사용한 활성탄을 다음과 같이 3가지 방법으로 표면 처리하였다.

첫번째 방법은, 산처리 방법(OAC)으로 7 N HNO₃을 이용하여 6 mL HNO₃ : 1 g AC 비율로

혼합하여 11시간 동안 안정화시킨 후 후드 내에 설치된 항온조에서 80~90℃로 가열하면서 10시간 동안 교반하였다. 산처리된 활성탄은 초순수를 이용하여 15회 이상 충분히 세척 후 105℃에서 24시간 건조하여 데시게이터에 보관하였다.

두번째 방법은, 염기처리 방법(Na-AC)으로 1N NaOH과 1 N NaCl 용액을 1 : 1로 혼합하여 활성탄 부피(5 g = 약 10 mL)의 10배 이상 넣고 항온조에서 30℃로 48시간 교반 후 초순수를 이용하여 15회 이상 충분히 세척하였으며 105℃에서 24시간 건조하여 데시게이터에 보관하였다.

세번째 방법은, 산처리후 염기처리 방법(Na-OAC)으로 산처리한 활성탄을 이용하여 염기처리 과정을 다시 실시하였다.

활성탄의 물리적 특성을 알기 위해 BET-N₂ 분석을 하였고, 활성탄 표면의 화학적 특성을 분석하기 위해 Boehm¹⁴⁾이 제시한 중화 적정법과 SEM-EDAX 분석을 실시하였다.

중화 적정법에서 관능기 측정에는 NaOH, NaHCO₃, Na₂CO₃ 0.1 N 표준 염기 용액을 사용하였다. 150℃에서 충분히 건조된 활성탄 1 g을 각각의 표준 염기 용액 100 mL에 넣고 질소 분위기하에서 30℃로 온도를 고정한 후 48시간 동안 교반하였다. 혼합 염기 용액을 membrane filter (0.45 μm)로 여과한 후 50 mL를 0.1 N HCl로 역적정하여 측정하였다. 용액내의 우라늄 농도는 시약용 우라늄인 UO₂(NO₃) 6H₂O (Merck Co.)을 일정량 초순수에 희석하여 사용하였다.

3.2. 실험 방법

흡착 실험은 회분식 교반 실험 장치를 이용하여 실시하였다. 표면 처리 활성탄의 우라늄 흡착에 대한 pH 영향을 살펴보기 위하여 0.1 N HNO₃와 0.1

N NaOH 용액을 이용하여 우라늄 농도 50 mg/l, 부피 40 mL인 수용액을 초기 pH 2~9로 조정하고 표면 처리 활성탄 0.05 g을 이용하여 30℃ 상에서 48시간 교반하면서 실험을 실시하였다. 흡착 후 우라늄 용액의 pH를 기록하고, 우라늄 용액을 membrane filter(0.45 μm)로 여과 후 잔류 우라늄 농도를 분석하였다. 우라늄의 농도는 Arsenazo(III) 발색 시약을 이용하여 분광 광도기(Spectronic 1201, Milton Roy)로 측정하였다. 또한 용액내 우라늄 농도를 25~600 mg/l, 용액의 초기 pH 3, 4로 고정하고 등은 평형 흡착 실험을 진행하여 평형 흡착량을 측정하였다.

4. 결과 및 고찰

BET-N₂ 분석을 통해 파악한 표면 처리 활성탄의 물리적 특성을 Table 1에 나타내었다. Table 1에 나타난 결과를 보면 강산, 강염기를 이용하여 활성탄을 표면 처리한 결과 비표면적과 미세기공(micropore) 부피 등이 감소하는 경향을 나타내고 있다. 강산과 강염기를 이용한 활성탄의 표면 처리에 관한 이전의 연구^{15,16)}에서 비표면적이 감소하였다는 결과를 보고하고 있는데 본 실험에서도 동일한 경향을 관찰할 수 있었다.

Fig. 1은 활성탄의 표면 처리 방법에 따른 기공 크기의 분포 변화를 나타내고 있다. 처리 전 활성탄에 비해 산처리 활성탄과 산처리 후 염기처리 활성탄의 미세기공(micropore)의 부피가 감소하고 중기공(mesopore)의 부피가 증가함을 알 수 있다. 이와 같은 분석 결과로 볼 때 활성탄의 표면 처리 과정에서 미세기공(micropore)의 기공셀이 파괴되어 중기공(mesopore)으로 발달되면서 비표면적이 감소하는 것을 알 수 있다.

Table 1. Physical properties of surface-modified activated carbon BET-N₂ analysis

Physical Properties	Units	AC	Na-AC	OAC	Na-OAC
Micropore volume	m ³ /kg	4.41×10 ⁻⁴	4.37×10 ⁻⁴	3.31×10 ⁻⁴	2.85×10 ⁻⁴
BET surface area	m ² /kg	1.62×10 ⁶	1.59×10 ⁶	1.36×10 ⁶	1.14×10 ⁶
Micropore area	m ² /kg	9.55×10 ⁵	8.32×10 ⁵	7.24×10 ⁵	5.37×10 ⁵
Av. pore radius	Å	2.07	2.12	2.35	2.89

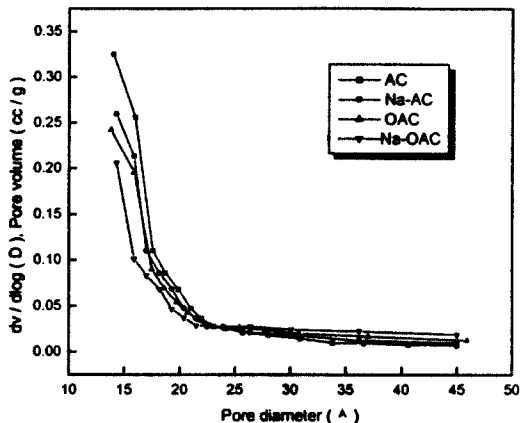


Fig. 1. Pore size distributions of the surface-modified activated carbon.

Table 2. Acidic surface oxides of surface modified activated carbon

Adsorbent	I (meq/g)	II (meq/g)	III (meq/g)	Total acidity (meq/g)
AC	0.164	0.077	0.103	0.344
Na-AC	0.128	0.064	0.096	0.288
OAC	1.505	0.763	0.66	2.927
Na-OAC	0.011	0.074	0.55	0.625

I : Strongly acidic carboxyl group
 II : Weakly acid carboxyl group
 III : Phenolic hydroxyl group

중화 적정법을 이용하여 활성탄 표면에 형성된 표면 관능기를 측정된 결과를 Table 2에 나타내었다. 활성탄의 화학적 성질에 많은 영향을 미치는 표면 관능기는 표면 처리 방법에 따라 크게 변화하고 있다. 산처리 활성탄의 경우 처리 전 활성탄에 비하여 표면 관능기의 총량을 나타내는 총산도가 크게 증가하였다. 특히 강산 카르복실기(strongly acidic carboxyl group)의 증가가 뚜렷이 나타나고 있다. 산처리 후 염기처리 활성탄의 경우는 처리 전 활성탄에 대해서는 총산도가 증가하였지만, 산처리 활성탄에 비하여 약 80% 정도 감소하였다. 또한 강산 카르복실기(strongly acidic carboxyl group)의 감소가 뚜렷이 나타나고 있다. 이러한 표면 관능기의 감소는 관능기의 H⁺ 이온이 염기처리에 의해 Na⁺ 이온으로 치환되면서 나타난 결과로 생각된다.¹¹⁾ 이러한 결론은 Fig. 2의 SEM-EDAX 분석 결과를 통

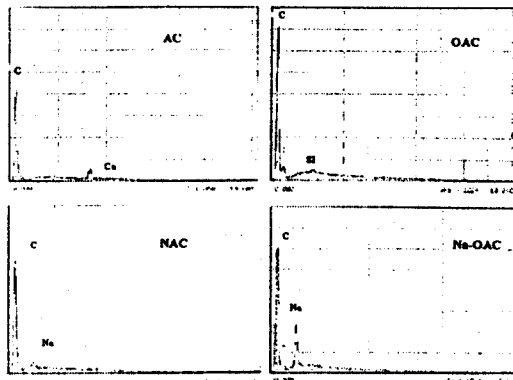


Fig. 2. SEM-EDAX spectrum for surface-modified activated carbon.

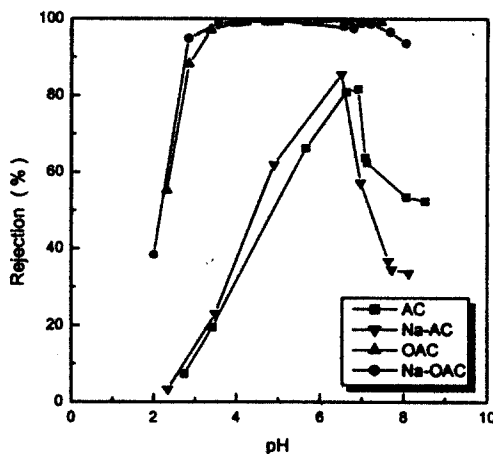
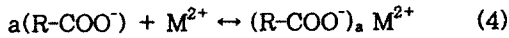
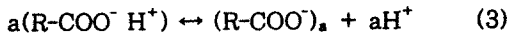


Fig. 3. Variations in removal percentage of uranium as a function of equilibrium pH at initial concentration of 50 mg/L(V: 40 mL, M: 0.05 g).

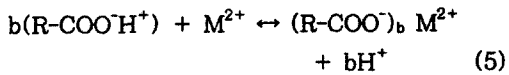
해서 확인할 수 있다. 표면 처리 전 활성탄이나 산처리 활성탄에 비하여 염기처리 활성탄과 산처리 후 염기처리 활성탄의 표면에 Na⁺ 이온이 상대적으로 증가함을 알 수 있다.

Fig. 3은 활성탄의 표면 처리 방법과 용액의 pH 변화에 따른 우라늄 제거율을 나타내고 있다. 표면 처리 활성탄에 의한 우라늄 제거율은 표면 처리 방법에 따라 큰 차이를 나타내고 있다. 평형 pH 2일 때는 각 표면 처리 활성탄의 우라늄 제거율은 큰 차이를 보이지 않는다. 그러나, 평형 pH 3 이상으로 증가하면 산처리 활성탄과 산처리 후 염기처리 활성

탄의 경우 처리 전 활성탄이나 염기처리 활성탄에 비하여 높은 우라늄 제거율(95% 이상)을 나타내고 있다. 표면 처리 방법에 따른 우라늄의 흡착 제거율의 차이는 활성탄 표면에 형성된 관능기량(카르복실기, 페놀기) 차이와 관련하여 설명할 수 있다. 활성탄에 의한 금속 이온의 흡착에 관한 이전의 연구에서 Abbasi,¹¹⁾ Carrot¹⁷⁾ 등은 흡착제 표면에서의 표면 관능기의 이온화와 이온교환 반응을 통해 우라늄을 포함한 금속 이온 흡착을 설명하고, 이를 식 (3), (4), (5)와 같이 나타내었다.



or



표면 처리 활성탄을 이용한 우라늄 흡착이 Abbasi 등의 제안에 따라 이온 교환을 통해 이루어질 때, 즉 활성탄 표면에 형성된 표면 관능기의 H⁺ 이온과 우라늄 이온의 교환 반응에 의하여 흡착이 이루어질 때, 활성탄 표면에 형성된 표면 관능기량은 우라늄 흡착량에 직접적인 영향을 미친다. 산처리 활성탄과 산처리 후 염기처리 활성탄이 처리 전 활성탄이나 염기처리 활성탄에 비하여 표면 관능기량이 크게 증가됨으로써 우라늄 이온의 흡착 제거율이 크게 증가하는 결과가 나타났다.

우라늄 흡착 제거율은 활성탄 표면에 형성된 표면 관능기뿐 아니라 용액의 pH 변화에도 많은 영향을 받는다. Fig. 3에서 용액의 pH가 2~7까지 상승할 때 우라늄 흡착 제거율은 증가하였다. 용액의 pH는 이온 교환을 통한 우라늄 흡착 과정에서 우라늄 흡착점으로 역할을 하는 표면 관능기의 해리도에 영향을 미친다. 표면 관능기의 해리도는 용액의 pH가 증가할수록 증가하는 경향을 보이는데, 강산성 카르복실기의 경우 pH 4 조건에서 H⁺이온의 해리가 진행된다.¹¹⁾ 용액의 pH 증가는 강산성 카르복실기뿐 아니라 약산성 카르복실기, 페놀기 등의 해리를 증가시킬 수 있다.

용액 상의 우라늄은 용액의 pH와 우라늄의 농도에 따라 다양한 형태의 이온으로 존재한다. 용액의 pH가 증가함에 따라 UO₂²⁺, UO₂OH⁺ 형태의 단량

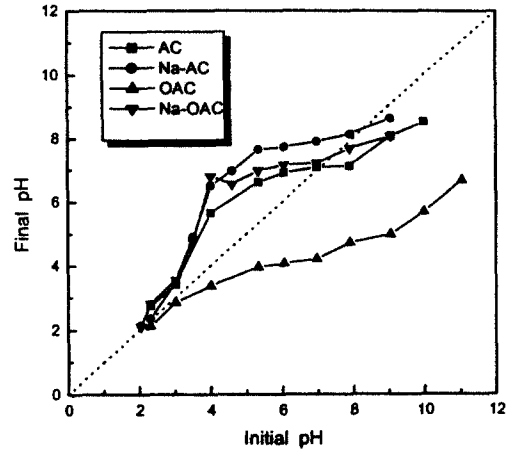


Fig. 4. Comparison of initial pH with the final pH after adsorption equilibrium at initial concentration of 50 mg/L (V: 40 mL, M: 0.05 g).

체가 (UO₂)₂(OH)₂²⁺ 형태의 중량체, (UO₂)₃(OH)₅⁺ 형태의 삼량체 등 분자량이 증가하는 형태를 이루고 있다.¹³⁾ 용액의 pH 변화에 따른 우라늄 흡착량의 변화는 표면 관능기의 해리도와 우라늄 이온의 분포 형태의 변화로 나타난 결과라고 할 수 있다. pH가 증가할수록 표면 관능기의 해리도가 증가하여 이온 교환 비율이 증가되고 흡착되는 우라늄의 형태가 단량체에서 중량체, 삼량체 형태로 변화되어 분자량이 커진 우라늄의 비율이 증가하면서 우라늄 흡착량이 향상되는 결과를 가져왔다. 용액의 pH가 증가하여 pH 7 이상이 되면 우라늄 흡착 제거율이 감소하는 경향을 나타내는데, 이러한 결과는 pH 7 이상에서 우라늄 이온이 (UO₂)₃(OH)₇⁻, (UO₂)₂(OH)₅⁻ 형태의 음이온으로 변환되고, 부분적으로 침전물 형성의 유도가 시작되기 때문이다. 우라늄 침전물이 형성됨에 따라 활성탄에 의한 흡착량이 감소하여 흡착에 의한 우라늄의 제거율은 낮아진다.

Fig. 4는 우라늄 용액의 초기 pH와 표면 처리 활성탄을 이용한 우라늄 흡착 후 pH를 비교한 그래프이다. 초기 pH가 일정하더라도 표면 처리 활성탄의 화학적 특성 차이에 따라 우라늄 흡착 후 평형 pH는 다양한 형태로 변화하게 된다. pH 3 이하의 낮은 pH에서는 흡착 후 pH의 변화가 거의 나타나지 않고 있다. 반면 pH 3~8 범위에서는 처리 전 활성탄, 염기처리 활성탄, 산처리 후 염기처리 활성탄의

경우는 흡착 후 pH가 상승하는 경향을 나타내고 산처리 활성탄을 이용한 경우는 초기 pH에 비하여 감소하는 경향을 나타내고 있다. 산처리 활성탄의 이와 같은 pH 감소 경향은 활성탄 표면에 형성된 관능기의 H⁺이온이 우라늄 이온과 치환되면서 지속적으로 용액 내로 이동하고 있음을 나타낸다.

방사성 액체 폐기물의 특성이 일반적으로 산성 범위이므로 등은 평형 흡착 실험에서 우라늄 용액의 초기 pH를 3과 4로 결정하였다. 용액의 pH가 3, 4 일 때 표면 처리 활성탄을 이용한 우라늄의 등은 평형 흡착실험 결과는 Freundlich isotherm을 이용하여 모사한 결과에 잘 부합되었으며, Fig. 5 및 Fig. 6과 같이 표현된다. Freundlich isotherm 적용에 따른 상수값은 Table 3에 정리하였다. 등은 평형 흡착 곡선은 흡착특성에 따라 Brunauer 등¹⁸⁾에 의해 6가지 형상으로 구분되는데, Fig. 5, 6은 위로 볼록한 형태(favorable)로 우라늄 농도가 증가함에 따라 평형 흡착량이 증가하는 type I과 같은 형상을 나타내고 있다. 이러한 형태의 등은 평형 흡착 곡선은 흡착질 농도가 낮아도 비교적 높은 흡착 능력을 나타내고 있다. 활성탄의 표면 처리 방법에 따라 우라늄의 흡착량에 큰 차이를 나타내고 있다. 산처리 활성탄과 산처리후 염기처리 활성탄은 처리 전 활성탄에 비교하여 우라늄 흡착량이 크게 증가하였다. 용액 pH가 3인 경우 최대흡착량 기준으로 산처리 활성탄의 흡착량은 93.3 mg/g으로 처리 전 활성탄의 흡착량 17.8 mg/g에 비하여 약 5배 이상 증가하였고, 산처리 후 염기처리 활성탄은 205.2 mg/g으로 처리 전 활성탄에 비하여 약 11배 증가하였다. 용액 pH 4인 경우는 산처리 활성탄의 최대 흡착량은 112.4 mg/g, 산처리 후 염기처리 활성탄은 275.9 mg/g으로 처리 전 활성탄의 최대 흡착량이 42.3 mg/g에 비하여 각각 3배와 7배 증가하였다. 산처리 활성탄의 우라늄 흡착량의 증가는 위에서 언급한 바와 같이 표면 관능기량의 증가로 설명되어진다. 산처리 후 염기처리 활성탄의 경우 산처리 활성탄 보다 흡착량이 큰 이유는 표면 관능기량의 증가뿐만 아니라 흡착 공정에서 용액의 pH 변화에 대한 영향이 크다.

Fig. 7, 8은 등은 평형 흡착 실험 후 용액의 pH를 나타낸 그래프이다. 산처리 활성탄은 평형 농도가

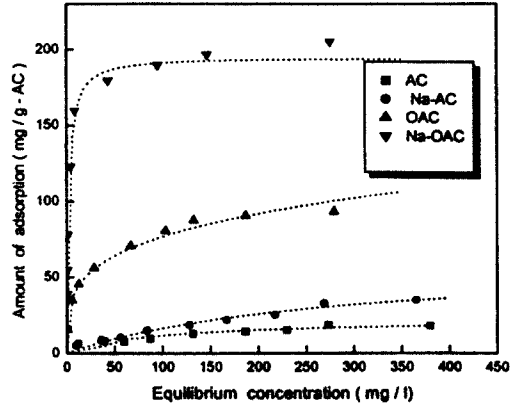


Fig. 5. Adsorption isotherm of uranium on surface-modified activated carbon at initial pH 3.

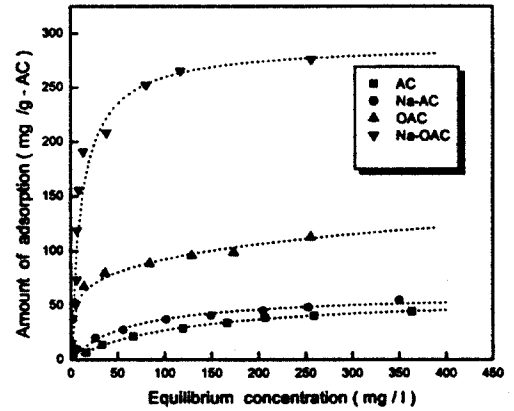


Fig. 6. Adsorption isotherm of uranium on surface-modified activated carbon at initial pH 4.

Table 3. Parameters of Freundlich isotherm equation for the adsorption of uranium on surface-modified carbon

Isotherm		Freundlich	
Types of AC	Initial pH	K	n
AC	3	1.47	1.32
	4	3.23	2.21
Na-AC	3	1.17	1.71
	4	11.50	3.86
OAC	3	23.05	3.83
	4	36.48	4.97
Na-OAC	3	43.94	4.93
	4	61.85	3.38

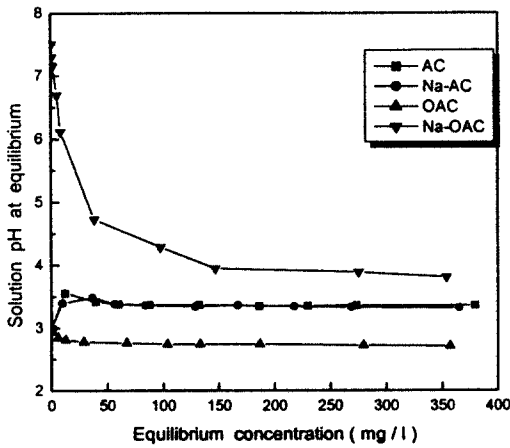


Fig. 7. Variations in equilibrium pH as a function of initial solution pH 3 at various equilibrium concentration of uranium on surface-modified activated carbon.

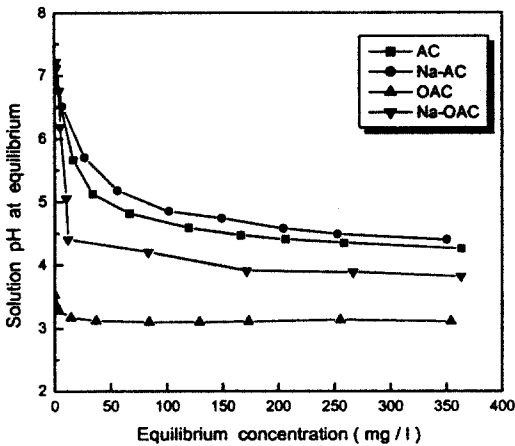


Fig. 8. Variations in equilibrium pH as a function of initial solution pH 4 at various equilibrium concentration of uranium on surface-modified activated carbon.

증가함에 따라 초기 pH 3, 4보다 감소하여 pH 2.7, 3.2에서 일정한 값을 나타내고 있고 산처리 후 염기 처리 활성탄은 초기 pH보다 상승한 값을 나타내고 있다. 등온 평형 흡착 실험에서 전체적으로 산처리 후 염기처리 활성탄이 산처리 활성탄 비하여 높은 pH를 형성하고 있다. 용액의 pH 변화에 따른 우라

늄 흡착 제거율 변화에 미치는 영향에 관한 위의 실험 결과에서 알 수 있듯이 용액의 pH 증가에 따라 우라늄 흡착량을 증가시키는데 산처리 후 염기처리 활성탄의 경우 산처리 활성탄에 비하여 높은 평형 pH를 형성함으로써 우라늄 흡착량을 크게 증가시키고 있음을 관찰할 수 있었다.

활성탄을 강산을 이용한 산처리 과정 이후 강염기를 이용한 염기처리 방법으로 표면 처리함으로써 표면 관능기량을 증가시킬 수 있었고, 또한 우라늄 흡착 과정에서 용액의 pH가 초기 pH 보다 증가됨으로써 우라늄 흡착량을 크게 증가시킬 수 있었다.

5. 결 론

강산, 강염기를 이용하여 표면 처리한 활성탄의 물리 화학적 특성과 우라늄 흡착량 변화를 조사하였다. 강산, 강염기를 이용한 활성탄의 표면 처리 방법은 활성탄의 미세기공(micropore)부피와 비표면적을 감소시켰다. 그러나 산처리 활성탄이나 산처리 후 염기처리 활성탄처럼 산처리 과정을 거친 활성탄에서는 표면 관능기량이 크게 증가되었다. 표면 처리 활성탄을 이용한 우라늄 흡착에서 표면 관능기량이 크게 증가된 산처리 활성탄은 처리전 활성탄에 비하여 우라늄 최대 흡착량이 3~5배 증가하였고, 산처리 후 염기처리 활성탄은 표면 관능기량의 증가뿐만 아니라 용액의 pH 증가에 따른 영향으로 처리전 활성탄에 비하여 7~11배 증가하였다. 이러한 결과를 통해 활성탄을 이용한 우라늄 흡착은 활성탄 표면에 형성된 관능기량과 용액의 pH 변화에 크게 지배를 받는다는 것을 알 수 있다.

참 고 문 헌

1. Benedict M., Pigford T. H., and Levi L. W., Nuclear Chemical Engineering, McGraw-hill, Inc.(1981).
2. Bansal R. C., Donnet J. B., and Stoeckli F., Activated Carbon, Dekker, New York (1988).

3. Huang C. P., "Chemical Interactions between Inorganics and Carbon." *In Carbon Adsorption Handbook*, P. N. Cheremisinoff and F. Ellerbusch, (Eds.), Ann Arbor science, Ann Arbor, Michigan(1978).
4. Litman R., et al., "Removal of Co-60 from Simulated Aqueous Waste Using Activated Carbon," *Sep. Sci. Tech.*, **54**(6), 359(1982).
5. Nair J. K., and Street M., "Decontamination of Aqueous Effluent Using Activated Carbon," *in proceedings of the International Ion Exchange conference*, Society of the chemical industry, Cambridge(1992).
6. Goodrich J. C., Adsorption of Uranium from Solution with Activated Carbon, USAEC Report TID-5101, Batelle Memorial Institute(1949).
7. Propst R. M., Ekechukwu O. E., and Dameron H. J., Pretreatment and Selective Materials for Improved Treatment of PWR Liquid Radioactive Waste, Electric Power Research Institute, EPRI NP-5786 (1988).
8. Ferro-Garcia M. a., Rivera-Utrilla J., Rodriguez-Gordillo J., and Baustista-Toledo I., "Adsorption of Zinc, Cadmium and Copper on Activated Carbons Obtained from Agricultural By-Products," *Carbon*, **26**(3), 363(1988).
9. Vinke P., Van der Eijk M., Verbree M., Voskamp A. F., and Van Bekkum H., "Modification of the Surface of a Gas-Activated Carbon and a Chemically Activated Carbon with Nitric Acid, Hypochlorite and Ammonia," *Carbon*, **32**(4), 675(1994).
10. Ryu S. H., Shim J. W., Jung H. H., Jung C. H., and Oh W. Z., "Removal of Chromium(VI) from Wastewater with a Packed Bed of Activated Carbon Fibers," *Proc. of Carbon '95*, American Carbon Society, San Diego, p. 472(1995).
11. Abbasi W. A., and Streat M., "Adsorption of Uranium from Aqueous Solutions Using Activated Carbon," *Sep. Sci. Tech.*, **29**(9), 1217(1994).
12. Park S. J., Kim K. D., and Lee J. R., "N₂, CO₂ and NH₃ Adsorption Behaviors of Activated Carbons on Acid and Base Surface Treatments," *J. of Korean Ind. & Eng. Chem.*, **9**(6)(1998).
13. Paquette. J., and Lemere. R. J., "A Description of the Chemistry of Aqueous Solution of Uranium and Plutonium to 200°C Using Potential-pH Diagrams," *Nuclear Science and Engineering*, **79**, 26 (1981).
14. Boehm H. P., Diehl E., Neck W., and Sappok R., "Surface Oxides of Carbon," *Angew. Chem. Internat. Ed.*, **3**, 669(1964).
15. Paajanen A., Lehto J., Santapakka T. and Morneau J. P., "Sorption of Cobalt on Activated Carbons from Aqueous Solution," *Sep. Sci. Tech.*, **32**(1-4), 813(1997).
16. Noh J. S., and Schwarz J. A., "Effect of Nitric Acid Treatment on the Surface Acidity of Activated Carbons," *Carbon*, **28**(5), 675(1990).
17. Carrott P. J. M., Ribeiro M. M. L., Nabais J. M. V., and Ramalho J. P. P., "Influence of Surface Ionization on the Adsorption of Aqueous Zinc Species by Activated Carbons," *Carbon*, **35**(3), 403(1997).
18. Brunauer S., Deming L. S., Deming W. S., and Teller E., *J. Amer. Chem. Soc.*, **62**, 1723(1940).