

활성탄을 이용한 방사성 폐액중 코발트의 제거특성

강문자 김준형 한국원자력연구소

*윤봉요 김철 아주대학교 에너지학과

가. 요약

이온에 대한 선택적인 흡착능력이 있는 활성탄을 사용하여 방사성폐액중의 ^{60}Co 의 제거특성을 살펴보았는데, 40-70메시크기의 활성탄은 폐액에대해 0.002g/ml 사용하면 98%의 제거율을 얻을 수 있었고 폐액내의 코발트 농도가 $7.5 \times 10^{-2} \text{ ppm}$ 이하 이면 98%이상의 제거율을 나타내었다. 그리고 활성탄에대한 코발트이온의 흡착에 나트륨, 세슘이온은 전혀 영향을 주지 않았으며 니켈은 코발트와 같은 정도로 흡착되었고 철은 코발트보다 흡착특성이 좋음을 알 수 있었다.

나. 내용

원자력 발전소에서 발생되는 방사성 액체폐기물을 최종적으로 처분하기 위해서는 고화체로 만들어야 하므로 고화할 폐액의 부피를 가급적 크게 줄일 수 있는 고감용기술이 필수적이며 또한 점차 엄격해지고 있는 환경 방출규제에 대처하기 위하여 제염효과도 우수한 기술이 요구된다. 현재까지 우리나라의 원자력 발전소나 연구소, 동위원소 이용기관에서 발생하는 방사성 폐액은 대부분 증발농축 방법으로 처리하고 있으나, 폐액내에 존재하는 여러가지 화학물질과 거품 그리고 부식 등의 문제로 인하여 운전조건이 까다롭고 원만한 처리가 힘든 상황이다. 그리고 기존의 이온교환방법은 공정이 간단하기는 하나 폐액에 일반 화학성분이 다양 존재할 경우는 수명이 짧아 효과적이지 못하다. 그러므로 선택 이온교환이 가능한 흡착제를 사용하여 폐액에 존재하는 극미량의 방사성 핵종만 제거하는 기술을 이용하면 제염효과가 우수할 뿐만 아니라 흡착제의 수명이 길어지기 때문에 감용면에서도 탁월하다.

이러한 특성을 가진 물질의 하나로 활성탄을 들 수 있는데, 활성탄은 무기이온에 대한 선택적인 흡착뿐만 아니라 방사선에 대한 안정성과 높은 순도를 가지기 때문

에 방사성 폐액중의 특정이온의 선택적인 흡착에 유용하다.

본 연구에서는 방사성 모의 폐액인 ^{60}Co 용액을 사용하여 활성탄의 크기나 무게변화와 폐액, 코발트농도 변화에 따른 흡착특성을 살펴보고 활성탄에 대한 코발트이온의 흡착에 Na, Cs, Ca, Ni, Fe등의 다른이온들이 미치는 영향을 살펴보고자 하였다.

다. 결과 및 논의

1. 활성탄의 크기와 무게

정수용 활성탄을 분쇄하고 표준망체로 체질하여 입자 크기가 20메시이상, 20-40메시, 40-70메시, 70-140메시, 140메시 이하가 되도록 나누어 사용하였다. 방사성 모의폐액인 ^{60}Co 용액은 $3.7 \times 10^2 \text{ Bq/ml}$ 의 비 방사능을 갖는 무담체 방사성 용액을 제조하고 용액의 이온강도는 NaCl 을 사용하여 0.005M 로 조절하였고 용액의 pH는 5가되도록 하였다. 크기별로 분류한 활성탄에 ^{60}Co 용액을 반응 시킨후 일정시간동안 Rotary shaker를 이용하여 흡착시키고 흡착전의 폐액과 흡착후 상징액의 방사능을 측정하여 % Adsorption(제거율)과 분배계수를 얻었다.

이들 결과로부터 활성탄의 입자크기가 작아질수록 % Adsorption이 증가하고 크기가 0.32mm 보다 작은 경우는 98%이상의 제거율을 나타냈다. 같은 실험방법으로 40-70메시의 활성탄을 폐액의 부피에 대해 $0.002, 0.005, 0.01, 0.02\text{g/ml}$ 으로 무게를 변화시켜 흡착 실험을 하였다. 활성탄의 무게가 증가할수록 % Adsorption은 증가하며 0.005g/ml 이상에서는 99%이상의 제거율을 얻을 수 있다. 그리고 분배계수는 흡착제가 0.002g/ml 인경우 최대값을 나타내었는데 분배계수는 흡착수율을 나타내므로 0.002g/ml 가 가장 적절한 흡착제의 함량이 된다. 이때 % Adsorption은 98.2로 높은 제거효과를 나타낸다.

2. 폐액의 코발트 농도 변화와 흡착등온선

폐액의 코발트농도를 $7.5 \times 10^{-4} \text{ ppm}$ 에서 점점 증가시켜 150ppm 이 되도록 변화시켜 흡착특성을 실험하였다. 이들 결과로부터 코발트농도가 150ppm 인 경우는 % Adsorption이 6.3이었고 농도가 감소할수록 제거율이 급격히 증가하다가 코발트가 0.75ppm 보다 적어지면 제거율은 95%이상이 되며 그보다 낮은 농도에서는 서서히 증가함을 알 수 있다. 그리고 폐액내의 코발트가 $7.5 \times 10^{-2} \text{ ppm}$ 이 하이면 98%이상의

제거율을 나타내는데 이들 결과는 모의 폐액으로 제조한 용액의 농도가 7.5×10^{-6} ppm임을 감안하면 그것의 10^4 배 까지는 높은 제거율을 나타낼 수 있다.

폐액의 코발트농도 변화에 대한 흡착실험 결과를 Freundlich Model 을 이용하여 활성탄에 대한 코발트의 흡착평형 관계를 살펴 보았다.

이들 결과로부터 폐액중의 코발트 농도가 7.5×10^{-3} ppm 이하인 경우는 Freundlich isotherm에 맞지 않으며 7.5×10^{-2} ppm 이상인 농도에서는 잘 맞음을 알 수 있다. 그리고 이때 각 상수의 값을 최소자승법으로 계산한 결과 $\log K_f = 0.49$ 이고 $1/n = 0.79$ 이였다.

3. 이성분계 평형

활성탄에 대한 코발트의 흡착특성에 영향을 미칠 수 있는 다른 양이온들을 살펴보기 위해 물분율을 변화시킨 이성분용액을 40-70메시, 0.002g의 활성탄을 사용하여 흡착실험을 하였다. 이때 코발트와 다른 양이온의 농도는 각각 1.0×10^{-3} M과 1.5×10^{-3} M, 5×10^{-4} M과 2×10^{-3} M, 2.5×10^{-4} M과 2.25×10^{-3} M, 1.25×10^{-4} M과 2.375×10^{-3} M, 5×10^{-4} M과 2.45×10^{-3} M 인 용액을 제조하였고 이들 용액의 두성분의 농도합이 2.5×10^{-3} M이 되도록 하였다. 그리고 양이온도 Na, Ca, Cs, Ni, Fe을 선택하여 실험하였고 두성분의 흡착전후 농도는 원자흡광분석법을 이용하여 측정하였다. 그리고 평형에서의 용액중 두성분의 물분율 ($C_{Co}/C_{Co}+C_X$)에대해 활성탄에 흡착된 두 성분의 물분율 ($\Gamma_{Co}/\Gamma_{Co}+\Gamma_X$)를 나타내어 흡착결과를 비교하였다.

이들 결과를 살펴보면 나트륨과 세슘이 코발트의 흡착에 전혀 영향을 주지 않음을 알 수 있었다. 즉 나트륨과 세슘이 용액중에서 존재해도 코발트의 흡착특성은 변화하지 않았다. 칼슘이 용액중에 존재하는 경우는, ($\Gamma_{Co}/\Gamma_{Co}+\Gamma_{Ca}$) 값의 분포가 0.3-0.85 사이의 값으로 활성탄에 칼슘이 약간씩 흡착함을 보여준다. 그리고 니켈이 코발트와 함께 존재하는 경우는 기울기가 거의 1에 가까운 직선을 얻을 수 있는데 이 사실은 니켈은 코발트와 같은 흡착특성을 나타냄을 알 수 있다. 철을 사용하여 실험한 경우는 ($\Gamma_{Co}/\Gamma_{Co}+\Gamma_{Fe}$) 값의 분포가 0-0.04사이의 값으로 코발트보다 철이 활성탄에 흡착이 잘되는 사실을 확인 할 수 있었다.

라. 결론

이온에대한 선택적인 흡착특성을 나타내는 활성탄에 방사성 모의 폐액인 ^{60}Co 의 흡착특성을 살펴본 결과, 활성탄의 크기가 작을수록 높은 제거율을 나타내었고 폐액에 대한 활성탄의 무게는 $0.002\text{g}/\text{ml}$ 이 가장 적절함을 알 수 있었다. 폐액내의 코발트 농도가 $7.5 \times 10^{-2}\text{ppm}$ 이하면 98%이상의 제거율을 나타내었고 Freundlich isotherm에 잘 맞음을 알 수 있었다. 그리고 나트륨과 세슘은 활성탄에대한 코발트의 흡착특성에 전혀 영향을 주지 않았으며 칼슘은 약간 흡착되고 니켈은 코발트와 같은 정도로 흡착되며 철은 코발트보다 흡착이 잘 되는 사실을 확인하였다.

마. 참고문헌

1. 김준형외, “방사성폐기물 처리기술 개발(VI)”
KAERI-NEMAC/RR-95/93 (1993)
2. J.Rivera-Utrilla, et.al., J.Chem.Tech.Biootechnol.
, 34A, pp 243-250(1984)
3. M.Saleem, et.al., Separation Science and Technology 27(2)
pp 239-253(1992)
4. Kenji M., et.al., Annuls of Nuclear Energy, Vol 5, pp 5-12 (1978)