

Sol-Gel 법에 의한 Tc 제거용 TPPBr-SiO<sub>2</sub> 복합 흡착제 제조

권지영, 문제권, 이일희, 양한범, 임재관

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

nikmoon@kaeri.re.kr

Tc-99은 장반감기 핵종이고 저농도에서도 독성이 강하기 때문에 고도의 제거기술이 요구되어 왔다. 이 핵종은 SF 1톤당 약 0.77 kg이 존재하며 Pd, Ru, Rh 등의 백금족 원소와 함께 그룹화되기도 한다. Tc는 보통 고농도인 경우 TBP 등으로 추출하는 것이 보편적이나 농도가 묽은 경우에는 추출법은 효과적으로 적용될 수 없다. 이런 이유로 다양한 방법이 모색되어 왔으며, 추출과 흡착을 혼합한 방법이 최근 활발하게 연구되고 있다. 여기에는 추출제를 유기 담체에 고정화시켜 추출크로마토그래피 방법으로 분리하는 것인데, 추출제를 중성의 이온교환수지에 합침시키거나 SiO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub>와 같은 무기 매질에 부착시키는 방법이 있다.

본 연구에서는 Tc의 흡착능이 우수함에도 분말 형태이기 때문에 컬럼 적용성이 어려운 TPPBr (Tetraphenyl phosphonium bromide)을 Sol-Gel 법으로 입자형태의 복합흡착제를 제조하고, Tc와 화학적 특성이 매우 유사한 Re를 사용하여 흡착능을 평가하였다.

TEOS는 산 또는 알칼리 촉매하에 물과 반응하여 실리카겔이 형성된다. 그러나 TPPBr과 같은 비 수용성 유기분말을 복합화하기 위해서는 우선 알콜로 균질용액으로 만든 후 So-Gel 합성해야 한다. 이 때 변수로는 H<sub>2</sub>O, TEOS 및 HCl의 사용 몰비 등이며, TPPBr의 함량은 가능한 한 최대 로 하고자 하였다.

그 결과 TEOS에 대한 HCl의 농도가 0.04M보다 낮아지거나 실리카겔 내 TPPBr의 함량이 54%가 넘어가면 불완전한 겔이 형성됨을 알 수 있었다. 따라서, TPPBr의 함량은 50%fn 고정하였다. 또한 교반 속도가 느려지면 겔화시간이 길어지고 불투명한 겔이 형성되는 것을 볼 수 있었다. 생성된 입자의 안정성을 확인하기 위해 물과 0.5 M 질산 용액에서 용해테스트를 하였으며 투명하게 형성된 겔은 용해 안정성을 보였으나 불투명한 겔은 질산수용액에서 TPPBr의 파우더 형태로 떨어져 사용에 적합하지 않은 것을 확인하였다.

TEOS에 대한 H<sub>2</sub>O의 비율을 변화시켜 HCl농도에 따른 겔화 시간을 측정된 결과를 Fig. 1에 나타내었다. H<sub>2</sub>O와 TEOS의 기본 반응 당량비가 3이므로 시험 범위를 3 ~ 6의 범위에서 변화시켰으며 HCl 과 TEOS 의 비율은 0.01 ~ 0.1 범위에서 수행하였다. 그 결과 물의 비율을 이 증가되면 가수분해가 촉진되지만 실리케이트의 비, 실리케이트의 농도는 줄어들게 되고 가수분해와 응축 반응비가 줄어 겔화 시간이 길어지게 되는 것을 확인하였다. 염산의 농도비는 0.04 ~ 0.08 범위에 있을 때 완전한 겔화반응이 이루어졌으며 겔화시간은 산도가 높을수록 짧아짐을 알 수 있다. 이는 산도가 늘어날수록 실리콘의 전자친화도가 커지게 되고, 친핵체의 공격을 쉽게 받을 수 있기 때문이다. 겔화가 완성된 SiO<sub>2</sub>-TPPBr 입자는 세척하여 40 °C에서 24시간 건조한 후 Re에 대한 흡착능을 평가하였다. 서로 다른 H<sub>2</sub>O 및 HCl 몰비에서 합성된 복합 흡착제에 대한 회분식 반응기에서 흡착 속도 실험을 수행하였다. 건조한 시료 1.0g에 질산용액에 용해시킨 100ppm Re 용액 500ml를 첨가하였고 200rpm으로 교반하면서 시간에 따른 흡착 거동을 평가하였으며 그 결과를 Fig. 2 에 나타내었다. H<sub>2</sub>O의 반응 비가 4일 때보다 5인 경우가 약 10 %정도 높은 흡착능을 나

타내었고 같은 H<sub>2</sub>O의 반응비의 경우에는 HCl의 몰농도가 높을수록 흡착속도가 빠른것을 보였다. 이상의 결과로부터 물의 반응비가 5이고 염산의 몰비는 0.08로 하는 것이 유리할 것으로 판단되나 좀더 신도 있는 연구가 추가로 필요하다고 판단된다.

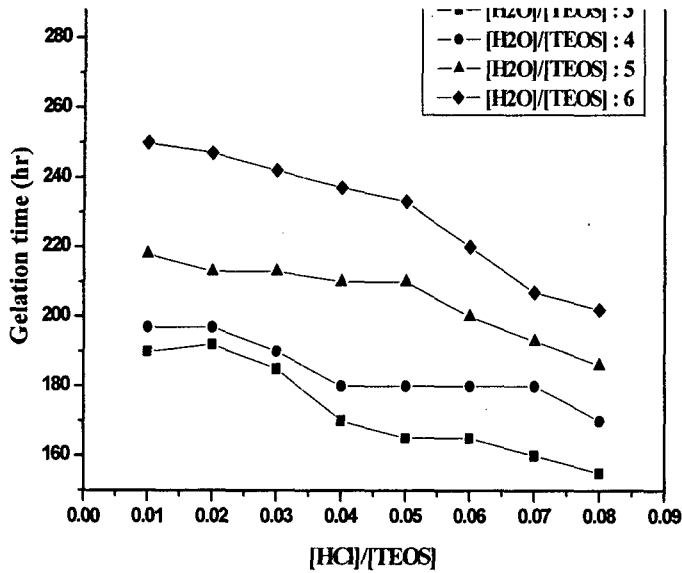


Figure 1. Effect of HCl Mole Ratio on the Gelation time for the Different H<sub>2</sub>O Ratios.

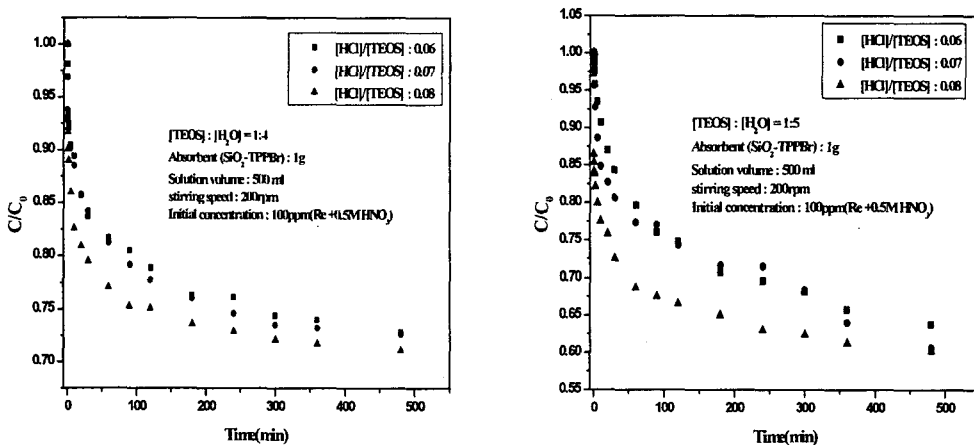


Fig. 2. Uptake Curves of TPPBr-SiO<sub>2</sub> Composite Adsorbents for Rhenium Solutions.