

## 혼합 제올라이트에 의한 모의폐액내 Cs/Sr 동시분리

권선길<sup>†</sup> · 김응호 · 이일희 · 이규일 · 유재형

한국원자력연구소

(1995년 7월 13일 접수, 1996년 3월 2일 채택)

## Co-Separation of Cs and Sr from Simulated Liquid Wastes by Mixed Zeolites

Seon Gil Kwon<sup>†</sup>, Eung Ho Kim, Eil Hee Lee, Kue Il Lee and Jae Hyung Yoo

Korea Atomic Energy Research Institute

(Received 13 July 1995; accepted 2 March 1996)

### 요 약

제올라이트 4A와 AW-500을 혼합한 제올라이트를 이용하여, 모의폐액내의 열 발생 핵종인 Cs과 Sr을 동시에 분리하는 연구를 수행하여 다음과 같은 결과를 얻었다. Cs과 Sr을 동시에 제거하기 위해서는 제올라이트 4A와 AW-500의 혼합비는 2:3, pH는 3.0-7.0이 좋았으며, 이 조건에서 Cs과 Sr의 이온교환용량은 각각 0.729 meq/g와 0.656 meq/g이었다. 혼합 제올라이트가 첨가되지 않은 경우에는 pH가 5 이상이면 대부분의 Cr, Fe 및 Pd는 침전물로 제거되고, Cs과 Sr은 대부분 용액내에 존재하나 혼합 제올라이트를 사용하여 거의 다 제거시킬 수 있었다. 그리고 제거율은 혼합 제올라이트의 주입량이 증가하고, 공존하는 염(salt)들이 적어지면 증가하였다.

**Abstract**—Heat-generating nuclide Cs and Sr were co-separated from simulated liquid wastes by mixed zeolites of zeolite 4A and zeolite AW-500. Adsorption characteristics of Cs and Sr by mixed zeolites were studied with a simulated liquid waste. The obtained main results were as follows: The appropriate mixing ratio of zeolite 4A to zeolite AW-500 was confirmed to be 2:3 for the simultaneous removal of Cs and Sr. A favorable pH region was found to be from 3.0 to 7.0. The amounts of Cs and Sr adsorbed were estimated to be 0.729 meq/g and 0.656 meq/g, respectively. Most of Cs and Sr remained in the solution and Cr, Fe and Pd were removed as precipitates when the pH rose over 5.0 without mixed zeolites. Then both Cs and Sr were completely removed by mixed zeolites. The removal percentage was improved with increasing mixed zeolite quantity and decreasing the presence of coexisting salts.

**Key words:** Cesium, Strontium, Zeolites, Separation, High-level Liquid Waste

### 1. 서 론

고준위 재처리폐액 중에 함유되어 있는 방사성 핵종을 화학적 특성이 유사한 원소별로 분리하여, 각각의 원소 군에 적합하고 안전하게 처분함으로써 장기적인 위해도를 줄이고 저장요건을 완화시켜, 고준위 액체폐기물에 대한 처리 및 처분의 합리화를 이룩할 수 있는 군(group) 분리기술이 개발되고 있다[1, 2].

이 중, 열 발생 핵종인 Cs과 Sr은 사용후 핵연료를 재처리한 후 5년이 경과된 고준위 액체 폐기물에서는 총 열량의 30% 이상을 점유하고 있으며, 이것을 고화시킨 고화체의 열량값은 저장시설에서 제거해야 할 열과 처분부지내의 고화체의 저장밀도를 결정하는데 지대한 영향을 미치는 중요한 설계인자이므로 이를 미리 분리시켜 고화체의 저장과 처분시설 설계시 열 부하를 감소시키는 것은 매우 의미 있는 일이며[3], 또한 분리된 이핵종들을 상호분리하여 열원 및 방사선원으로 각각 사용하는 것은 자원의 재활용 측면에서 매우 중요한 일이다[4].

지금까지 알려져 있는 Cs과 Sr의 분리기술로는 무기 이온교환체 및 유기 이온교환체에 의한 이온교환법, 인산팅스텐염이나 인산물 리브덴염에 의한 침전법, 공결정화 및 용매추출법 등이 있으나 비교적 공정이 단순하며 경제적인 이온교환법이 다양한 유기 이온교환체의 도입으로 원자력 산업에서 주로 채택되고 있다[5, 13]. 그러나 최근에는 유기 이온교환체보다 이온교환능은 다소 떨어지지만 처리가 용이하고, 비교적 높은 회수율을 갖고 있으며, 경비도 저렴할 뿐만 아니라 분리에 사용한 흡착제를 직접 배소하여 Cs과 Sr의 처분에 적합한 안정고화체로 직접 전환할 수 있는 잇점이 있는 무기 이온교환체에 의한 흡착 분리법의 사용이 고려되고 있다[6]. 이 중에서도 이온체 기능을 갖고 있는 제올라이트 즉, Cs의 선택적 제거는 3.6-3.7 Å의 작은 크기의 세공을 갖고 있는 chabazite형의 제올라이트나 3.9 Å의 합성 ferrierite가 가장 많이 이용되고 있으며[3-5, 8], Sr에 대해서는 11 Å으로 큰 공동(cavity)을 갖고 있는 제올라이트 4A가 강한 친화력을 갖고 있는 것으로 알려져 있다[15]. 그리고 형태가 서로 다른 제올라이트들을 혼합 사용하여 Cs과 Sr을 동시에

**Table 1. Chemical composition and physical properties of zeolite 4A and AW-500**

Zeolite	4A	AW-500
Typical formula	$\text{Na}_{12}[(\text{AlO}_2)_4(\text{SiO}_2)_{12} \cdot 27\text{H}_2\text{O}]$	$\text{Na}_4[(\text{AlO}_2)_4(\text{SiO}_2)_8 \cdot 13\text{H}_2\text{O}]$
Si/Al	1.0	2.0
Void volume( $\text{cm}^3/\text{cm}^3$ )	0.47	0.48
Density( $\text{g}/\text{cm}^3$ )*	1.54	-
Channel system	3 dimension	3 dimension
Type	1/16 inch pellets	1/16 inch pellets
Specific surface area (B.E.T.)( $\text{m}^2/\text{g}$ )	29.40	376.83
Micropore area( $\text{m}^2/\text{g}$ )	6.03	312.09
Micropore volume( $\text{cc}/\text{g}$ )	$2.62 \times 10^{-3}$	$14.59 \times 10^{-2}$
Average pore diameter( $\text{\AA}$ )	148.72	24.69

\*Calculated from the measured density of the hydrated zeolite and known water content.

**Table 2. Chemical composition of the simulated liquid waste**

Component	Reagent	Concentration(M)
Cs	$\text{CsNO}_3$	0.0371
Sr	$\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$	0.0165
Ba	$\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$	0.0207
Cr	$\text{Cr}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$	0.0091
Fe	$\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$	0.038
Pd	$\text{Pd}(\text{NO}_3)_2$	0.018

분리하고, 이를 직접 배소하여 고정화시키는 연구가 수행되고 있다[10].

본 연구에서는 TMI사고시 실제 고준위 액체폐기물에 사용되어진 바 있고[10], 전 연구[5]에서도 Cs와 Sr의 처리에 대해 각각 우수한 성능을 갖고 있는 것으로 판단된 chabazite형의 제올라이트 AW-500과 제올라이트 4A를 혼합 사용하여 이성분계 및 다성분계 모의 폐액에서 Cs와 Sr을 동시에 제거하고자 하였다[5, 17]. 실험은 제올라이트의 혼합비 및 주입량, 모의폐액의 pH 및 온도 등이 Cs와 Sr의 이온교환 및 흡착에 미치는 영향 등을 우선적으로 고찰하였고, 그리고 보다 더 실제적이고 효율적인 조업조건을 결정하기 위하여 다성분계 모의폐액에서의 흡착특성을 규명하였다.

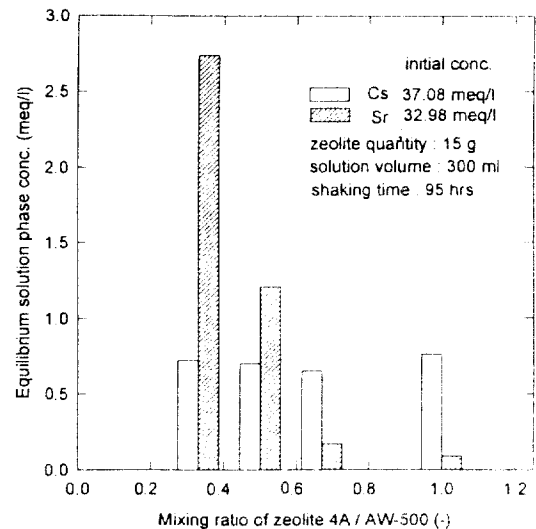
## 2. 실험

### 2-1. 재료 및 시약

Cs와 Sr의 분리 및 제거 실험을 위해 사용된 제올라이트 4A와 제올라이트 AW-500은 각각 1/16 in.의 pellet type으로 Aldrich Chemical Company, Inc.와 Yakuri Pure Chemicals Co., Ltd.에서 구입하였으며, 이의 일반적인 화학조성과 물성들은 Table 1과 같다[5]. 그리고 모의폐액을 제조하기 위해 사용된 시약들은 Aldrich Chemical Company, Inc.에서 구입한 초순도급이며, 각 원소의 화학조성 및 화합물은 Table 2와 같다.

### 2-2. 장치

항온교반기내에 설치된 외경이 7cm인 폴리에틸렌 병으로 이온교환 흡착 실험을 수행하였다. 수소이온 농도는 Orion Research Inc.사의 모델 EA 940 pH-meter로 측정하였으며, 채취된 시료 용액의 원소들은 GBC사의 모델 GBC 906AA인 불꽃 원자 흡수 분광분석기(Flame Atomic Absorption Spectrometer)와 Jobin Yvon사의 모델



**Fig. 1. Concentration of Cs and Sr in the equilibrium solution phase with mixing ratio of zeolite 4A and AW-500.**

JY50P인 유도 결합 플라즈마 원자 방출 분광분석기(ICP-AES)에 의해 분석하였다. 그리고 기타 장치들은 이전과 같다[5].

### 2-3. 실험방법

실험 조건에 따라 제올라이트 4A와 제올라이트 AW-500의 양을 정확히 측정하여 혼합한 다음, 시약들을 증류수에 용해시켜 Table 2와 같은 Sr과 Cs의 농도로 제조된 이성분계 모의폐액 300 ml에 첨가하여 항온교반기에서 교반한다. 그리고 실험조건에 따라 시료 용액들을 채취하여 상등액에 함유되어 있는 원소들의 농도를 분석한다. 그리고 다성분계 모의폐액인 경우에는 이 폐액에 필요한 성분들을 Table 2의 농도와 같게 추가하여 같은 방법으로 측정하였다. 이때 평형 이온교환용량(q)은 다음의 수식으로부터 계산하였다[11].

$$q = \frac{V(C_0 - C_f)}{W}$$

여기서  $C_0$  : 초기 용액의 농도(meq/l)

$C_f$  : 흡착후 상등액의 농도(meq/l)

$V$  : 흡착에 사용된 용액의 부피(l)

$W$  : 제올라이트의 무게(g)

## 3. 결과 및 고찰

### 3-1. 이성분계 모의폐액에서의 Cs 및 Sr의 분리

#### 3-1-1. 제올라이트 4A와 AW-500의 혼합비 영향

Table 2의 농도로 제조된 Cs와 Sr의 이성분계 모의폐액 300 ml에 혼합 제올라이트 15 g을 제올라이트 4A와 AW-500의 혼합비를 변화시키면서 주입하여 평형상태의 Cs와 Sr의 잔존농도 변화를 혼합비에 따라 Fig. 1에 도시하였다. 제올라이트 4A와 AW-500의 혼합비가 1/1, 2/3, 1/2, 1/3으로 변화함에 따라 Sr 선택성 제올라이트인 4A의 함유량이 7.5, 6, 5, 3.75 g으로 감소하여, Sr의 잔존농도는 0.09, 0.17, 1.21, 2.74 meq/l로 증가하였다. 그러나 Cs 선택성 제올라이트인 AW-500의 함유량은 제올라이트 4A와 AW-500의 혼합비가 1/1, 2/3, 1/2, 1/3로 변화함에 따라 7.5, 9, 10, 11.25 g으로 증가하는데도 불구하고 Cs의 잔존농도는 0.76, 0.65, 0.70, 0.72 meq/l로 혼합비가 2/3인 경우가 제일 낮게 나타났다. 그러므로 제올라이트 4A와

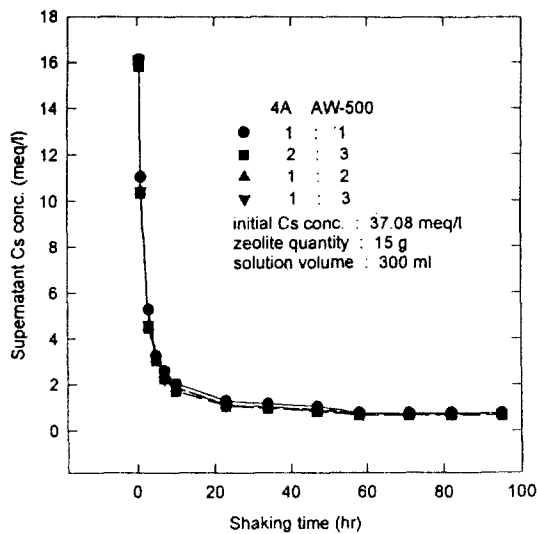


Fig. 2. Supernatant concentration of Cs with shaking time for different mixing ratio of zeolite 4A and AW-500.

AW-500의 혼합비는 2:3의 경우가 1:2, 1:3의 혼합비보다 Sr의 잔존농도는 훨씬 적고 Cs의 잔존농도는 약간 적었으며, 1:1의 혼합비보다는 Sr은 약간 많고 Cs는 그보다 적어 큰 차이를 보이지 않았으나 전체적으로는 2:3의 제올라이트 4A와 AW-500의 혼합비가 이온교환 흡착량이 가장 좋을 것을 확인할 수 있다. 이는 제올라이트 4A와 AW-500의 Sr 및 Cs에 대한 각각의 이온교환용량이 0.659 meq/g와 0.661 meq/g인데 비해, 제올라이트 4A와 AW-500의 혼합비가 2:3인 경우는 각각 0.656 meq/g와 0.729 meq/g으로 Sr을 흡착시키기 위해 사용한 제올라이트 4A에는 Sr의 이온교환 및 흡착에 거의 영향을 주지 않으면서 Cs의 일부가 흡착되고 있음을 보여주는 결과로서 제올라이트 4A와 AW-500을 적당히 혼합하여 사용하면 실제 필요한 제올라이트보다 적은 Cs 선택성 제올라이트를 갖고도 Cs를 만족스럽게 분리할 수 있다.

### 3-1-2. 진탕시간(shaking time)의 영향

Fig. 2와 3은 Table 2와 같은 농도의 Cs과 Sr 용액 300 ml에 제올라이트 4A와 AW-500을 2:3으로 혼합한 제올라이트 15 g을 주입하였을 때 진탕시간에 대한 Cs과 Sr의 상등액 농도 변화를 보여준다. Cs의 상등액 농도는 혼합비와 무관하게 3시간까지는 급격히 감소하다가 3시간 이후 10시간 사이에서는 감소속도가 상당히 둔화되어, 10시간 이후 58시간 사이에서는 미미한 변화를 보이고, 그 이후에는 평형에 도달하였다. 그러나 Sr의 상등액 농도는 제올라이트 4A와 AW-500의 혼합비가 1:1 및 2:3의 경우는 Cs과 같은 경향을 보이나, 1:2 및 1:3은 1:1 및 2:3의 경우와 달리 10시간까지 완만하게 감소하다가 그 이후 23시간까지는 보다 더 감소속도가 둔화되어 58시간 이후에는 모두 다 평형에 도달하였다. 이와 같은 현상은 혼합비가 1:2 및 1:3의 경우 Sr을 흡착하는데 필요한 제올라이트 4A량이 실제 필요한 양보다 적기 때문에 모의폐액속의 Sr이 상대적으로 더 많이 이온교환 흡착되지 못하고 남아있기 때문인 것으로 판단된다.

### 3-1-3. 제올라이트 4A와 AW-500의 주입량 영향

Cs과 Sr을 동시에 제거하기 위한 혼합제올라이트의 주입량을 최적화시키기 위하여 제올라이트 4A와 AW-500을 2:3의 비율로 혼합하여 5-35 g으로 변화시키면서 평형에 도달하였을 때 제거율 변화를 Fig. 4에 도시하였다. Cs 및 Sr의 평형시 제거율은 제올라이트 4A와 AW-500의 주입량이 증가함에 따라 급격히 증가하다가 15 g 이상에

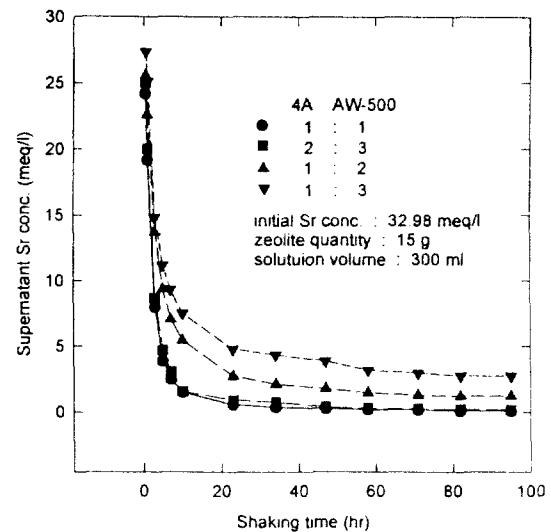


Fig. 3. Supernatant concentration of Sr with shaking time for different mixing ratio of zeolite 4A and AW-500.

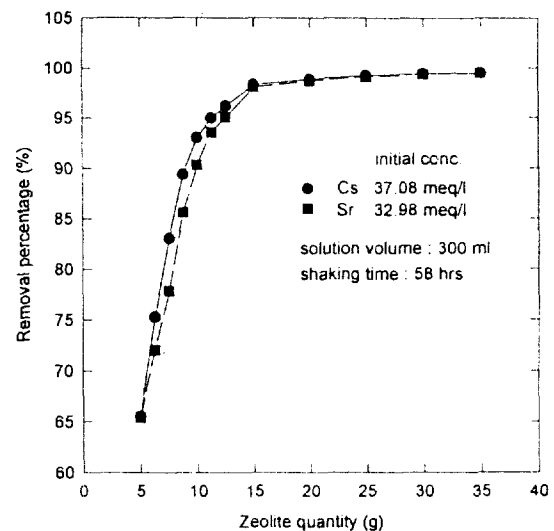


Fig. 4. Removal percentage of Cs and Sr with quantity of the zeolite containing 40% of 4A and 60% of AW-500.

서는 증가 속도가 상당히 둔화되어, 25 g 이상을 주입하면 Cs 및 Sr을 99% 이상 분리시킬 수 있었다.

### 3-1-4. 모의폐액의 수소이온 농도(pH) 영향

제올라이트계의 내산성을 고찰하기 위하여, 초기 모의폐액의 수소이온 농도를 질산용액으로 조절하여 수소이온 농도에 따른 이온교환용량의 변화를 Fig. 5에 도시하였다. Sr의 이온교환용량은 pH=1에서는 0.426 meq/g이었다가 pH=2에서는 0.635 meq/g으로 급격히 상승하여 pH가 3, 4, 5, 6에서는 0.656 meq/g으로 변화가 없었고, Cs의 이온교환용량은 pH=1에서만 0.713 meq/g으로 약간 낮고 그 이상에서는 0.729 meq/g으로 변화가 없었다. 이와 같은 현상은 각종 제올라이트의 내산성이 일반적으로  $10^{-1}$  mol/l 이상의 질산 용액에서 구조가 파괴되어 양이온 교환소가 차단되고,  $10^{-2}$  mol/l 이하의 질산 용액에서는 안정하다는 연구 결과[6]와 비슷한 경향으로 강산성인 경우에는 제올라이트 4A와 AW-500에 대한 고유의 제성능보다 Sr과 Cs의 흡착이 감소되기 때문에 제올라이트 AW-500은 pH >

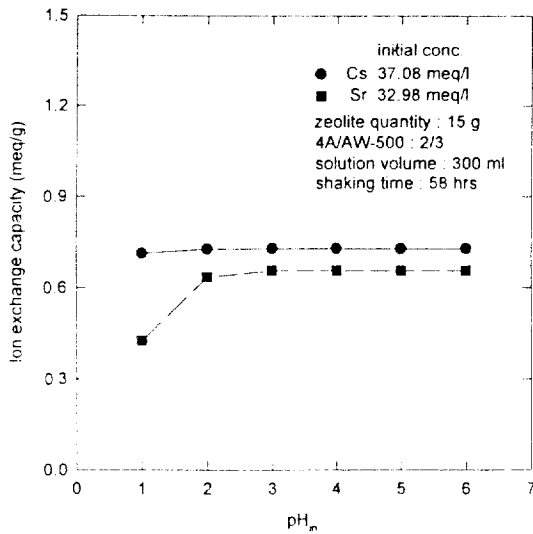


Fig. 5. Effect of pH<sub>m</sub> on the ion exchange capacity of zeolite for Cs and Sr.

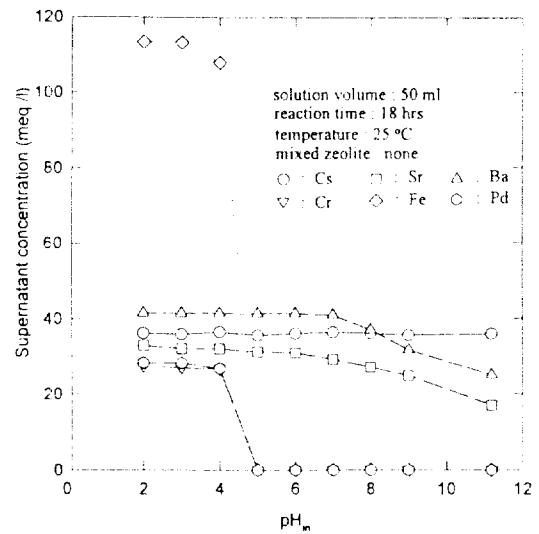


Fig. 7. Effect of initial pH on the supernatant concentrations of the various elements.

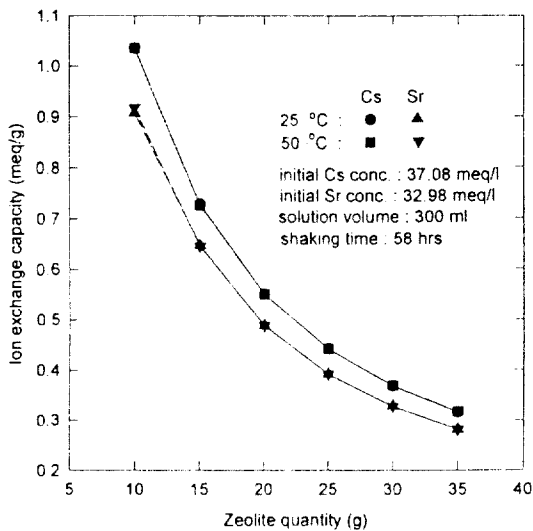


Fig. 6. Effect of temperature on the ion exchange capacity for Cs and Sr with quantity of the zeolite containing 40% of 4A and 60% of AW-500.

2에서, 제올라이트 4A는 pH>3에서 조업하는 것이 효율적임을 알 수 있었다.

### 3-1-5. 모의폐액 온도의 영향

제올라이트 4A와 AW-500의 혼합비가 2:3인 혼합 제올라이트를 모의폐액 300 ml에 주입하고, 온도를 25, 50°C로 변화시켜 이온교환 용량에 대한 온도의 영향을 Fig. 6에 도시하였다. Cs의 이온교환용량은 온도의 영향을 받지 않았으나, Sr에 대한 25와 50°C의 이온교환 용량은 혼합제올라이트 주입량이 10g이었을 때에는 약 0.011 meq/g의 차이를 보이며, 15g 이상이 되면 온도의 영향은 관찰되지 않았다. 이와 같은 현상은 제올라이트 4A의 Si/Al비가 제올라이트 AW-500의 Si/Al비와 비교해서 절반정도인 1.0으로 이온반경이 큰 양이온에 대한 흡착 선택성은 있으나, Si가 적기 때문에 온도에 민감하다. 따라서 온도가 상승하면 제올라이트 4A와 Sr과의 이온교환 반응이 증진되고, Sr의 가수분해 반응에 따른 표면침전과 이것과 기질

(substrate)과의 흡착반응에 의한 산화물 다중 층의 형성을 촉진시켜 이미하지만 온도의 영향이 관찰된 것으로 사료된다. 그리고 Sr의 이온교환용량은 Sr 선택성인 제올라이트 4A의 주입량이 적을 때는 모의폐액내의 Sr농도에 비해 상대적으로 제올라이트 4A의 주입량이 적어 그 영향이 나타나지만 제올라이트 4A의 주입량이 증가하면 모의폐액내의 Sr이 거의 존재하지 않기 때문에 온도의 영향이 관찰되지 않은 것으로 생각된다. 이상의 결과를 종합해 볼 때 이성분체인 제올라이트 4A/AW500-Sr/Cs계에서의 온도 변화에 따른 이온교환 용량의 변화는 단일성분계와 같은 현상을 보이는 것으로 사료되나 그 영향은 아주 미미하였다.

## 3-2. 다성분계 모의폐액에서의 Cs 및 Sr의 분리

### 3-2-1. 제올라이트가 미첨가된 다성분계 모의폐액에서 pH에 따른 원소들의 침전 거동

제올라이트의 가수분해로 모의폐액의 pH가 상승하기 때문에 군 분리 전처리공정에서 발생하는 폐액속에 존재하고 있는 원소인 Cs, Sr, Ba, Cr, Fe 및 Pd의 침전특성은 매우 중요하다. 그래서 이들 원소들을 함유하고 있는 50ml의 모의폐액에 제올라이트를 전혀 첨가하지 않고, 단지 pH만을 2-11.2로 변화시키면서 18시간 동안 상온에서 실험을 수행하여 pH의 변화에 따른 침전현상을 Fig. 7에 도시하였다.

Cs, Sr 및 Ba는 다른 원소들이 침전된 상등액내에 대부분 잔류하였으나 원소마다 다음과 같은 약간의 차이를 나타내었다. Cs는 pH가 2에서 11.2로 변화하여도 pH의 영향을 받지 않았고, Sr의 상등액 농도는 pH=6까지는 미미한 변화를 보이다가 pH=7에서는 감소속도가 증가하여 pH=8 이상에서는 급격히 감소하였다. 그리고 Ba의 상등액 농도는 pH=7까지는 미미한 변화를 보이다가 pH=8 이상에서는 급격히 감소하였으며, Cr, Fe 및 Pd는 초기 pH가 대략 4까지는 약간 감소하다가 pH=5 이상에서는 모두 침전되어 상등액에는 존재하지 않았다. 이런 현상은 Fe, Cr 그리고 Pd들이 가수분해 반응으로 침전되어 상등액에는 전혀 존재하지 않아 모의폐액의 색깔이 초기의 검은 갈색에서 흰색으로 변화하는 것으로부터도 알 수 있으며, pH=5에서 Cs, Sr과 Ba는 각각 99%, 95% 그리고 99% 이상이 상등액에 남아있고, 기타 원소들은 모두 침전물로 제거되었다.

### 3-2-2. 혼합제올라이트를 주입한 3성분계 모의폐액에서의 원소 거동

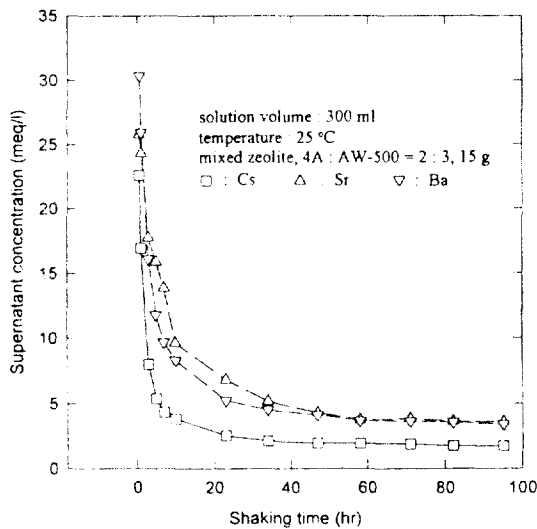


Fig. 8. Variation of the supernatant concentration of Cs, Sr and Ba with shaking time ( $pH_m=3.0$ ).

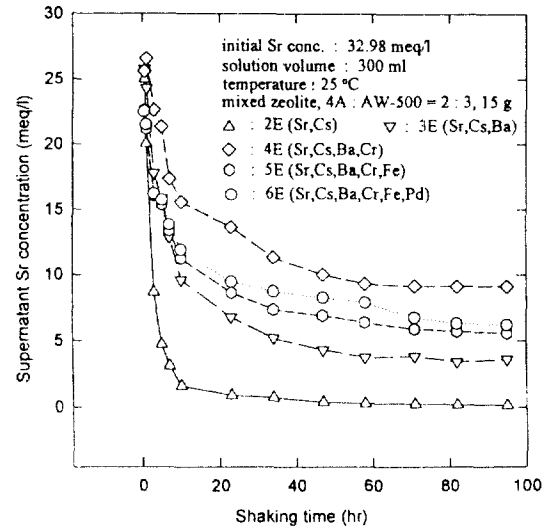


Fig. 10. Variation of the supernatant concentration of Sr with shaking time for systems with different components ( $pH_m=3.0$ ).

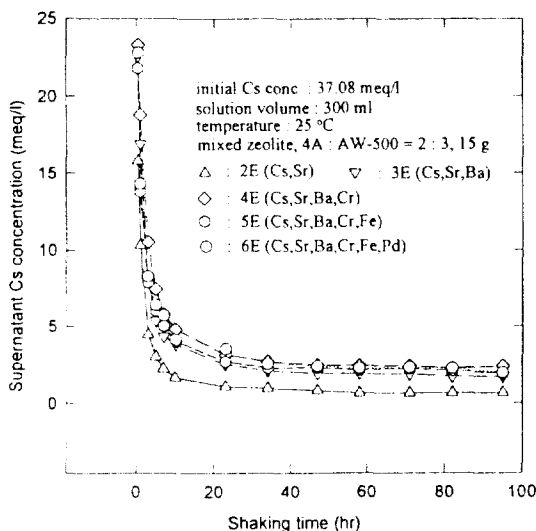


Fig. 9. Variation of the supernatant concentration of Cs with shaking time for systems with different components ( $pH_m=3.0$ ).

침전물로 제거되는 Cr, Fe 및 Pd를 제외한 Cs, Sr 및 Ba의 모의폐액의 초기 pH를 제올라이트 특성에 영향을 미치는 않는 pH=3.0으로 조정하고, 제올라이트 4A와 AW-500의 혼합비가 2:3인 혼합제올라이트 15g을 주입하여 진탕시간에 따른 상등액의 농도 변화를 Fig. 8에 도시하였다. Cs, Sr 및 Ba의 상등액 농도는 이성분계에서의 경향과 유사하게 진탕시간에 따라 급격히 감소하다가 58시간 이후에는 평형에 도달하였다. 평형에서의 상등액 pH는 약 7 정도로 앞에서 언급하였던 바와 같이 Cs과 Ba는 pH의 영향을 거의 받지 않고, Sr은 pH의 영향을 받아 각각 99%, 96% 그리고 90% 이상이 상등액 중에 존재하여 제올라이트와 이온교환 및 흡착 반응이 일어났음을 알 수 있다. 그리고 Sr과 Ba는 원자가가 같은 동족의 이온들로 원자 번호가 큰 Ba의 선택성이 Sr에 비해 약간 커, 제올라이트에 Sr보다 Ba이 조금 더 빠르고, 약간 더 많이 이온교환 및 흡착되어 상등액 중의 잔존농도가 상대적으로 약간 낮아졌으나, 시간이 경과함에 따라 pH의 상승으로 Ba는 거의 침전되지 않지만, 일부분의 Sr은 침전이

일어나 그 차이가 좁혀진 것으로 판단된다.

### 3-2-3. Cs 및 Sr의 동시분리에 미치는 공존 원소의 영향

Fig. 9 및 10은 2성분계(Cs 및 Sr), 3성분계(Cs, Sr 및 Ba), 4성분계(Cs, Sr, Ba 및 Cr), 5성분계(Cs, Sr, Ba, Cr 및 Fe), 6성분계(Cs, Sr, Ba, Cr, Fe 및 Pd)에서 Cs과 Sr의 이온교환 및 흡착거동을 조사하기 위하여 초기 pH를 3.0으로 조정한 300 ml의 모의폐액내에 제올라이트 4A와 AW-500을 2:3으로 혼합한 제올라이트 15g을 주입하고, 진탕시간에 따른 상등액 중의 Cs과 Sr의 농도를 각 성분계에 대해 도시한 그림이다. 상등액 중 Cs과 Sr의 잔존농도는 모의폐액내에 공존하는 원소의 종류에 관계없이 모두 같은 경향을 보여주었다. 그러나 상등액 중 Cs과 Sr의 잔존농도는 2성분계, 3성분계, 5성분계, 6성분계 그리고 4성분계의 순으로 많아지는 경향을 나타내었다. 이 현상은 Fig. 7에서 보여주는 바와 같이 Cs, Sr 및 Ba의 대부분은 상등액에 존재하므로 제올라이트에 이온교환 및 흡착되나 Cr, Fe 및 Pd는 대부분 침전되거나 미량만이 제올라이트와 반응함으로써 Cs과 Sr의 이온교환 및 흡착에 영향을 주어 3성분계 이상에서는 Cs과 Sr의 잔존농도가 2성분계에 비해 높고, 모의폐액내에 공존하는 원소의 수가 증가함에 따라 Cs과 Sr의 잔존농도도 미미하나 많아져야 할 것으로 사료된다. 그러나 4성분계에서의 Cs과 Sr의 잔존농도가 5성분계 및 6성분계에는 존재하나, 4성분계에는 존재하지 않는 Fe의 carrier 작용으로 5성분계와 6성분계에 비해 약간 높게 나타났다. 그리고 각 성분계의 차이는 Cs에 비해 Sr이 훨씬 크게 나타났는데, 이런 현상은 일부의 Ba, Cr, Fe 및 Pd들이 Cs에 선택성이 있는 제올라이트 AW-500보다는 Sr에 선택성이 있는 제올라이트 4A와 더 많이 반응하여 Sr이 점유했던 자리를 상대적으로 더 많이 차지했기 때문인 것으로 사료된다.

## 4. 결 론

혼합한 제올라이트 4A와 AW-500을 사용하여 모의폐액내에 존재하는 Cs과 Sr을 동시에 분리하는 실험을 수행하여 얻어진 결과는 다음과 같다.

(1) 회분식 실험에서 얻어진 최적조건은 모의폐액의 pH가 3.0-7.0, 제올라이트 4A와 AW-500의 혼합비와 진탕시간은 각각 2:3과 58 시간이며, 온도의 영향은 미미하였다. 이와 같은 조건에서 Cs과 Sr

은 각각 99% 이상 분리되었고, 혼합 제올라이트를 15g 주입하였을 때 이온교환용량은 제올라이트 4A와 AW-500의 Sr 및 Cs에 대한 각각의 이온교환용량 0.659 meq/g과 0.661 meq/g에 비해, Sr은 약간 낮은 0.656 meq/g이었고, Cs은 훨씬 높은 0.729 meq/g으로 Cs 및 Sr을 동시에 제거시키기 위해서는 제올라이트를 혼합해 사용하는 것이 제올라이트의 사용량을 줄일 수 있다.

(2) Cs은 pH의 영향을 받지 않으나, Sr은 pH=6까지는 미미한 변화를 보이다가 pH=7에서는 감소속도가 증가하여 pH=8 이상에서는 급격히 감소하였고, Ba는 pH=7까지는 미미한 변화를 보이다가 pH=8 이상에서는 급격히 감소하였다. 그리고 Cr, Fe 및 Pd은 가수분해 반응으로 pH=5 이상에서는 모두 침전되었다.

(3) 3성분계(Cs, Sr 및 Ba)에서의 Cs, Sr의 거동은 2성분계(Cs 및 Sr)와 같은 경향을 보이나, Ba의 영향으로 이온교환용량은 다소 적게 나타났으며, 특히 Sr과 Ba는 원자가가 같은 동족의 이온들로 원자번호가 큰 Ba의 선택성이 Sr에 비해 약간 크기 때문에 상등액의 잔존농도가 적게 나타났다.

(4) Cs 및 Sr의 모의폐액내 거동은 공존하는 원소의 종류와 관계없이 모두 같은 경향을 보이나, 상등액 중의 Cs과 Sr의 잔존농도는 Fe의 carrier 작용과 일부지만 다른 원소의 제올라이트와의 반응으로 2성분계, 3성분계, 5성분계(Cs, Sr, Ba, Cr 및 Fe), 6성분계(Cs, Sr, Ba, Cr, Fe 및 Pd) 그리고 4성분계(Cs, Sr, Ba 및 Cr)의 순으로 많아졌고, 각 성분계의 차이는 Cs에 비해 Sr이 훨씬 크게 나타났다. 이와 같은 현상은 일부의 Ba, Cr, Fe 및 Pd들이 Cs에 선택성이 있는 제올라이트 AW-500보다는 Sr 선택성의 제올라이트 4A와 더 많이 반응하여 Sr이 점유했던 자리를 상대적으로 더 많이 차지했기 때문인 것으로 판단된다.

(5) 이상의 결과들을 요약해 보면, 군분리 공정의 전처리 공정에서 발생하는 폐액으로부터 Cs 및 Sr을 동시에 분리하고 제거하는데 있어, 가장 좋은 결과들은 먼저 제거 가능한 핵종들을 활성탄 흡착이나 탈질 공정을 통해 제거한 후 무기 이온교환체를 사용할 때 얻어질 것으로 기대된다.

## 참고문헌

1. Kubota, M., Yamaguchi, I., Okada, K., Morita, Y., Nakano, K.

and Nakamura, H.: *Mat. Res. Soc. Symp.*, **26**, 551(1984).  
 2. Kubota, M., Dojiri, S., Yamaguchi, I., Morita, Y., Yamagishi, I., Kobayashi, T. and Tani, S.: *Amer. Soc. Mech. Engineers*, 537 (1989).  
 3. Mimura, H., Akiba, K. and Igarashi, H.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **30**(3), 239(1993).  
 4. Mimura, H., Akiba, K. and Kawamura, K.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **31**(5), 463(1994).  
 5. Lee, E. H., Lee, W. K., Yoo, J. H. and Park, H. S.: *J. Korean Ind. & Eng. Chemistry*, **4**(4), 731(1993).  
 6. Rolly, J. W.: ORNL TM-7782, 1981.  
 7. Mimura, H., Tachibana, F. and Akiba, K.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **29**(2), 184(1992).  
 8. Breck, D. W.: "Zeolite Molecular Sieves". John Wiley & Sons, New York, NY(1974).  
 9. Mori, R., Yamaguchi, I. and Kubota, M.: JAERI-M 86-013, 1986.  
 10. Collins, E. D., Campbell, D. O. and King, L. J.: IAEA-TC- 518/4, 1984.  
 11. Kim, K. R., Lee, K. J. and Bae, J. H.: *Sep. Sci. Technol.*, **30**(6), 963(1995).  
 12. Takagi, S.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **15**(3), 213(1978).  
 13. Kenna, B. T. and Murphy, K. D.: *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **41**, 1535(1979).  
 14. Wallace, R. M. and Ferguson, R. B.: DP-MS-80-65, 1980.  
 15. Mimura, H., Akiba, K. and Igarashi, H.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **31**(2), 136(1994).  
 16. Mimura, H. and Akiba, K.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **30**(5), 436 (1993).  
 17. Lee, E. H., Yoo, J. H. and Park, H. S.: *J. Korean Ind. & Eng. Chemistry*, **4**(4), 739(1993).