

각종 제올라이트계에서의 Cs 및 Sr 분리특성

이 일 희 · 이 원 경 · 유 재 형 · 박 현 수

한국원자력연구소 부설 원자력환경관리센터
(1993년 4월 29일 접수, 1993년 7월 2일 채택)

Separation Behavior of Cs and Sr on the Various Zeolites

Eil-Hee Lee, Won-Kyung Lee, Jae-Hyung Yoo, and Hyun-Soo Park

Nuclear Environment Management Center in KAERI
(Received April 29, 1993, Accepted July 2, 1993)

요 약 : 본 연구에서는 각종 제올라이트 즉 국내산 천연 및 합성 제올라이트를 이용하여 방사성폐액 내에 있는 Cs, Sr 이온을 분리하는데 주안점을 두어 각종 제올라이트에 대한 이온교환선택성, 이온교환능 및 이에 영향을 미치는 변수 등을 고찰하여 최적의 제올라이트 선정과 분리조건을 결정하는데 중점을 두었다. 이온교환능에 있어 Cs의 경우는 AW500형, Sr의 경우 13X형이 가장 우수한 결과를 나타내었다. AW500-Cs계, AW300-Cs계, 천연산 제올라이트-Cs계 및 4A-Sr계, 13X-Sr계의 온도영향을 고찰한 결과 4A-Sr계 및 천연산 제올라이트-Cs계를 제외하고는 온도와 무관한 관계를 나타내었다. 이중 4A형 제올라이트는 온도 증가에 따라 Sr이온의 활동도 증가 및 multilayer 흡착에 의하여 이온교환량이 증가한 것 같다. 평형상태에서의 용액의 pH와 분배계수, K_d 와의 상관관계를 고찰하여 본 결과 pH의 증가에 따라 K_d 값의 증가를 보였다. 또한 주입용액의 pH는 2~3 이상에서 조업하는 것이 효과적인 것으로 나타났다. AW500-Cs계의 경우 K_d 는 $10^3 \text{cm}^3/\text{g}$, 4A-Sr계 및 13X-Sr계의 경우 K_d 는 $10^3 \sim 10^4 \text{cm}^3/\text{g}$ 정도를 나타내었다.

Abstract: This study showed the adsorption behavior of Cs and Sr into the inorganic ion-exchanger zeolites such as 4A, 13X, AW300, AW500 and natural. It was found that the best type of zeolite is AW500 for Cs and 13X for Sr in terms of ion-exchange capacity. The temperature effect was also examined for the following systems: AW500-Cs, AW300-Cs, natural zeolite-Cs, 4A-Sr and 13X-Sr. Experiments showed that the effect of temperature on the ion-exchange capacity is negligible in all cases except for the systems of 4A-Sr and natural zeolite-Cs. The enhancement in the ion-exchange capacity for 4A-Sr would be caused by the Sr ion movement and the multilayer adsorption due to the heterogeneous characteristics of ion-exchange site. The distribution coefficient was increased with pH of the solution which is in equilibrium with zeolite particles. The values of K_d in the systems of AW500-Cs and 4A-Sr were found to be about $10^3 \text{cm}^3/\text{g}$ and $10^3 \sim 10^4 \text{cm}^3/\text{g}$ respectively.

1. 서 론

우리나라 원자력발전은 1978년 고리원자력 1호기의 상업운전을 시작으로 현재 9기가 운전중에 있고, 7기는 건설중에 있으며 총 발전용량 중 약 50%를

담당하고 있어 국가산업 전반에 차지하고 있는 비중이 막중하며 2006년까지 총 27기의 원자력발전소를 가동할 중장기 전원계획을 갖고 있다. 원자력발전의 증가는 필연적으로 발생하는 방사성폐기물 양의 급증을 예상하며 이에 대처할 수 있는 방사성폐기물의 안

전관리 및 이에 수반되는 처리·처분 기술의 확립은 절실히 필요하다.

특히 물에 용출되기 쉽고, 물에 대한 용해성이 큰 Cs 및 Sr 원소는, 처분시 인간생태계의 누출 가능성이 매우 큰 방사성핵종으로, 처분시 처분 안전성 제고라는 측면에서 핵종의 지중이동이 가능한 방사성 물질의 선 제거 격리라는 점과 Cs-137은 방사선원으로, Sr-90은 열원으로서 이용 가능한 유효물질이므로 재사용 측면에서 이의 분리, 회수 기술개발은 필요한 기술개발 분야의 하나이다.

방사성폐기물에서의 Cs, Sr의 분리기술은 무기이온 교환제 및 유기이온교환체에 의한 이온교환법, phosphungstate나 phosphomolybdate에 의한 침전법, 공결정화(co-crystallization) 및 용매추출법 등이 많이 연구되어 왔으나[1-5], 상당공정이 상대적으로 높은 비용, 공정의 복잡성, 2차폐기물 발생 등으로 실용화되지 못하고 있으며 비교적 공정이 단순하고 경제적인 이온교환법이 광범위한 유기이온체의 도입으로 원자력산업에서 주로 채택되고 있는 실정이다.

그러나 최근에는 방사성물질을 안정하게 고정시킬 수 있는 고착제(immobilizer)로서, 즉 방사성폐액 중에 함유된 다양한 양이온종과 선택적으로 이온교환하고 이를 배소하여 직접 고화체로서 이용하는 분야까지 활용범위가 확대되고 있어 처분안정성 제고라는 관점에서 유기이온 교환체보다 이온교환능은 다소 떨어지지만 내고온성(약 900°C), 내방사선성이 우수한 무기이온교환체의 일종인 제올라이트의 사용이 고려되고 있다[6-8].

본 연구에서는 각종 제올라이트 즉 국내산 천연 및 합성 제올라이트를 이용하여 방사성폐액 내에 있는 Cs, Sr 이온을 분리하는데 주안점을 두어 각종 제올라이트에 대한 이온교환선택성, 이온교환능 및 이에 영향을 미치는 변수 등을 고찰하여 최적의 제올라이트 선정과 분리조건을 결정하기 위한 흡착특성을 규명하는데 중점을 두었다.

트 선정과 분리조건을 결정하기 위한 흡착특성을 규명하는데 중점을 두었다.

2. 실험방법 및 분석

본 연구에서 사용하는 제올라이트는 신양 Ore Chemical(주)사 제품의 천연산 제올라이트 및 미국 Union Carbide사 제품의 1/16인치 Linde 4A, 13X (faujasite), AW300(mordenite), AW500(chabazite) 등으로 이중 UC사 제품은 약 20~30%의 binder를 함유하고 있으며, 이를 분쇄하여 사용하였고 각각의 제올라이트는 사용전 증류수에 침지시켜 완전히 세척한 후, 건조하고 수분함량을 일정하게 유지하기 위하여 NH₄Cl 포화용액(습도: 79.3%, 25°C)이 담겨져 있는 건조기(desicator)에 보관하여 이용하였다.

각 합성제올라이트의 화학적인 조성 및 물성은 Table 1과 같다[9].

제올라이트의 입자크기는 체분석방법에 의해서 40~60mesh 정도의 입자크기를 선별하여 평균값으로 구했으며, 겉보기밀도(apparent density)는 일정량의 제올라이트를 단면적이 1cm²인 눈금실린더에 채워서 수지가 차지하는 부피로서 측정하였고, 비표면적(specific surface area) 및 세공 크기(pore size)는 N₂가스 흡착에 의한 BET(Brunauer Emmett Teller) 법에 의거 측정하였다. 상기 분석에 의해서 얻어진 값들은 Table 2와 같다.

용액제조는 상업용특급시약인 CsCl 및 SrCl₂·6H₂O를 증류수에 각각 용해시켜 일정농도의 용액으로 제조하여 사용하였고, 실험은 회분식 방식으로 수행하였으며, 농도분석은 Cs이온의 경우 A.A(atomic ab-

Table 1. Chemical Compositions and Physical Properties of Some Zeolites

Zeolite	Chemical Composition	Void Volume (-)	Density (g/cm ³)	Channel System
Na A	Na ₄₂ [(AlO ₂) ₁₂ (SiO ₂) ₁₂]27H ₂ O	0.47	1.54	3 dimension
Na X	Na ₄₂ [(AlO ₂) ₁₆ (SiO ₂) ₁₆]276H ₂ O	0.50	1.43	3 dimension
AW300	Na ₄ [(AlO ₂) ₄ (SiO ₂) ₆]24H ₂ O	0.28	1.80	2 dimension
AW500	Na ₄ [(AlO ₂) ₄ (SiO ₂) ₈]13H ₂ O	0.48	-	3 dimension

Table 2. Experimental Values on Properties of Some Zeolites

Zeolite	Average Particle Diameter (cm)	Apparent Density (g/cm ³)	Specific Surface Area (m ² /g)	Pore Size (Å)	Micropore Volume (cc/g)
4A	0.0336	0.73	13.625	73.838	0.0024
13X	0.0336	0.66	571.665	18.042	0.2448
AW300	0.0336	0.75	35.779	102.440	0.0037
AW500	0.0336	0.68	385.256	24.947	0.1466
Natural	0.0336	0.88	83.758	32.106	0.0265

sorption spectro photometer, Model : Varian AA475), Sr의 경우는 I.C.P(induced couple plasma spectrophotometer, Model : Jobinyvon JY38plus)를 사용하였다.

평형이온교환 용량측정은 일정량의 제올라이트를 화학저울로 정확히 평량하여 Cs 및 Sr 용액 200ml 를 500ml polyethylene 삼각플라스크에 각각 넣고, 25°C 또는 50°C 의 일정한 온도에서 교환기로 24시간 이상 교환한 후, 일정량의 상등액을 취하여 Cs 및 Sr 농도를 각각 분석하여 다음식으로 평형 이온교환용량 (q) 및 분배계수(K_d)를 측정하였으며, 동시에 초기 용액과 평형에 도달한 상등액의 pH도 측정하였다.

$$q = \frac{V}{W} (C_o - C_f) \quad (1)$$

$$K_d = \frac{V}{W} \frac{(C_o - C_f)}{C_f} \quad (2)$$

여기서, C_o : 초기용액의 농도(meq/ℓ)

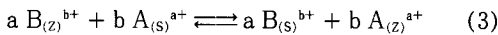
C_f : 흡착 후 상등액의 농도(meq/ℓ)

W : 제올라이트의 무게(g)

V : 흡착에 사용된 용액의 부피(ℓ)

3. 실험결과 및 고찰

제올라이트에서 양이온의 이온교환 거동은 일반적으로 1) 양이온종의 전하, 크기 및 성질, 2) 온도, 3) 용액상에서의 양이온 농도 및 공존하는 음이온종, 4) 용매(통상 수용상에서 수행하나 유기용매나 용융 염에서도 수행), 5) 제올라이트의 구조특성에 영향을 받고 있으며[6], 가역 평형반응으로 이온교환체가 다 성분 양이온을 함유하고 있는 용액과 접촉하여 평형상태에 도달하고, 각각의 양이온종과 선택적으로 이온교환반응을 한다.



여기서 A, B : 이온교환 하는 양이온

a, b : 이온교환 되는 양이온 A, B의 원자가 수

(z), (s) : 제올라이트상, 용액상

3. 1. 이온교환 선택도(selectivity coefficient)

제올라이트에서의 이온교환선택성은 각 제올라이트의 구조, Si/Al의 비, 및 이온교환소의 위치 등에 영향을 받고 있으며, 특히 분자 거르기 효과에 의해 들

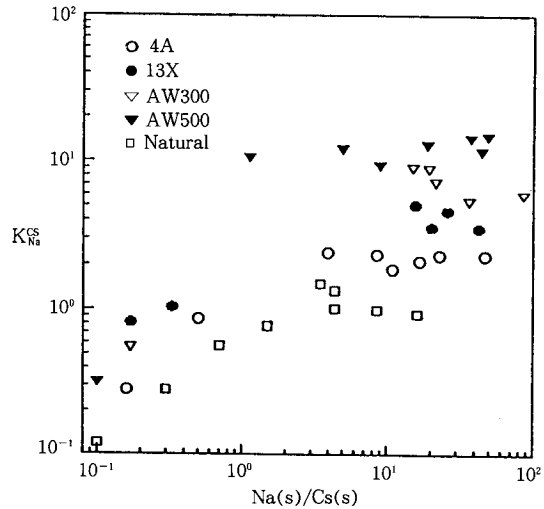


Fig. 1. Vibrations of selectivity coefficient on Cs with solution equivalent ratios at 25°C(total solution concentration: 1,000ppm).

어가는 이온의 배제 혹은 포획에 의해 예외성을 많이 나타내므로, 일반적으로 다음과 같이 표현되고 있다.

$$K_B^A = \frac{A_z^b B_s^a}{B_z^a A_s^b} \quad (4)$$

여기서, A_z, B_z : 제올라이트에서의 양이온 A, B의 당량분율

A_s, B_s : 용액상에서의 양이온 A, B의 당량분율

각종 제올라이트상에서 Na 이온에 대한 Cs 및 Sr 이온의 선택도를 식(4)에 의해서 계산하여 Fig 1, Fig 2와 같이 얻었다. Cs이온에 대한 선택도는 AW500>AW300>13X>4A>천연산 순으로 나타나며, Sr 이온에 대한 선택도는 Cs 이온과는 완전히 다른 4A>13X>AW500>AW300>>천연산 순으로 나타났으나, AW300 및 천연산의 경우 선택도가 너무 작은 값을 갖고 있어 그림으로 나타나지 못했다. 이는 지금까지의 연구결과[10,11] 즉, Cs 이온에 대한 선택도는 chabazite>mordenite>X>A 및 Sr 이온에 대한 선택도는 A>X>mordenite>chabazite 순인 것과 거의 같은 경향을 보였다. 다만 Sr 이온에 대한 선택도에서 mordenite와 chabazite의 순서가 타연구자의 결과와 다른 것은 mordenite 사용시 충분한 산처리 과정의 미수행 혹은 실험 오차에 기인한

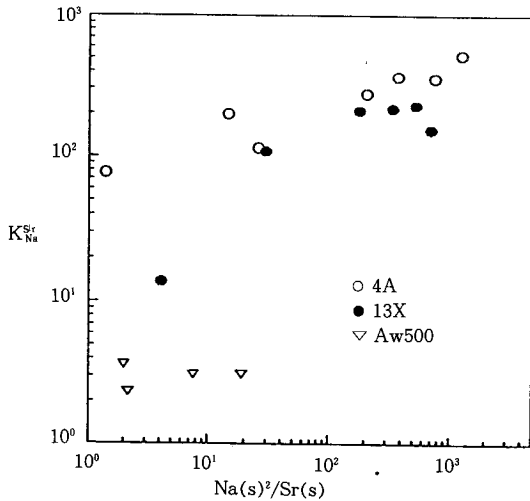


Fig. 2. Vibrations of selectivity coefficient on Sr with solution equivalent ratios at 25°C (total solution concentration: 1,000ppm).

것 같고, 또한 천연산의 경우 합성제올라이트보다 선택도가 모두 감소하고 있는 것은 천연산 제올라이트 내의 불순물 등의 영향에 기인한 것 같다. 상기 결과를 재정리하면 Cs 이온은 AW500, AW300 제올라이트에서, Sr 이온은 A, X형 제올라이트에서 분리, 제거하면 보다 효율적임을 알 수 있다.

3. 2. 이온교환능

이온교환능은 이온교환체가 이온교환할 수 있는 능력을 나타내는 것으로 타이온교환체와의 성능 비교나, 이온교환장치를 설계할 때 주요한 인자가 된다. 제올라이트에서의 이온교환능은 Si/Al의 비에 좌우 되는데, 이는 제올라이트 구조에서 각각의 AlO₄ 사면체가 하나의 양이온교환소를 갖고 있기 때문이며, Si/Al 비가 감소할수록 이온교환능이 증가하는 특성을 갖고 있다.

각종 제올라이트에 대한 Cs 및 Sr 이온의 흡착능은 25°C에서 Cs 이온의 경우 AW500>AW300>13X>4A>천연산 순이며, Sr 이온의 경우는 13X>4A>AW500>AW300>>천연산 순으로 얻었으나, 전질의 선택도와 관련하여 AW500-Cs계, AW300-Sr계, 4A-Sr계 및 13X-Sr계만을 선정하여 중점적으로 고찰한다. 그리고 각 제올라이트에 대한 Cs 및 Sr 이온의 흡착 평형곡선은 일반적으로 물리적 흡착반응에서 널리 이용되고 있는 대표적인 등온식 중의 하나

인 식(5)의 Langmuir 등온식을 기본식으로 이용하였다.

$$q = q_{\infty} \frac{KC}{1+KC} \tag{5}$$

여기서 q : 제올라이트상의 평형흡착량 (meq/g)

q_∞ : 제올라이트상의 최대흡착용량 (meq/g)

C : 용액상의 평형농도 (meq/g)

K : Langmuir상수

식(1)에서 얻어진 AW500 제올라이트에 대한 Cs 이온의 평형흡착, 천연산 제올라이트에서의 Cs 평형흡착 및 4A, 13X 제올라이트에 대한 Sr 이온의 평형흡착 결과는 Fig. 3, 4, 5 및 Fig. 6과 같다. 상기 결과를 식(5)와 연관하여 C 및 C/q의 관계로 도식화하면 직선식이 얻어지며, 이 직선식의 기울기 및 절편으로부터 q_∞ 및 K 값을 산정하여 Table 3과 같은 평형등온식을 얻었다.

상기 결과를 고찰하면 Cs 이온에서는 AW500이 AW300 및 천연산 제올라이트보다 이온교환능이 크며, Sr 이온에서는 13X가 4A보다 이온교환능이 크므로 같은양의 제올라이트로 보다 효과적으로 Cs 및 Sr 이온을 분리할 수 있음을 보여주는데, 이는 AW500 및 13X 제올라이트가 AW300 및 4A 보다 구조적 특성에 의한 비표면적 및 미세공체적의 증가에 기인한다(Table 2 참조). 그러므로 Cs 이온의 분리는 선택도 및 이온교환능의 측면에서 AW500 제올라이트에서 수행하는 것이 좋지만, Sr 이온의 경우는 선택도 측면에서 4A가 13X 보다 더 좋으므로, Sr 이온분리시는 계의 특성을 고려하여 제올라이트 종류를 선정하는 것이 좋을 것으로 사료된다.

3. 3. 농도의 영향

용액상의 농도가 증가할수록 Fig. 3, 4, 5 및 Fig. 6과 같이 이온교환량이 증가하는 경향을 보이고 있으며, 천연산 제올라이트의 경우를 제외하고는 모두

Table 3. The Values of q_∞ and K

System	Temperature (°C)	Maximum adsorption capacity, q _∞ (meq/g)	Equilibrium constant, K
AW300-Cs	25	1.288	1.196
AW500-Cs	25	1.769	1.058
4A-Sr	25	2.639	5.063
	50	3.297	2.128
13X-Sr	50	3.678	3.764

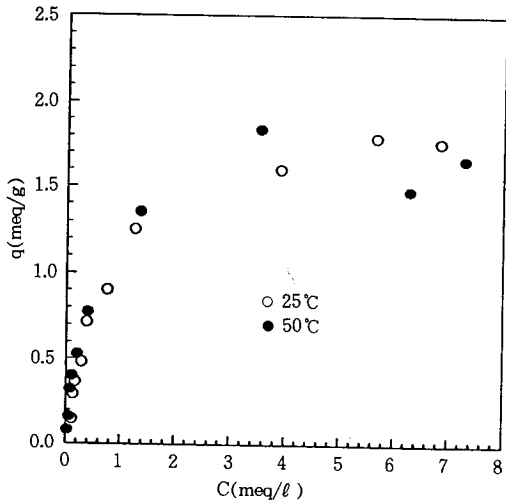


Fig. 3. Equilibrium isotherm of Cs on zeolite AW500 with adsorption temperature.

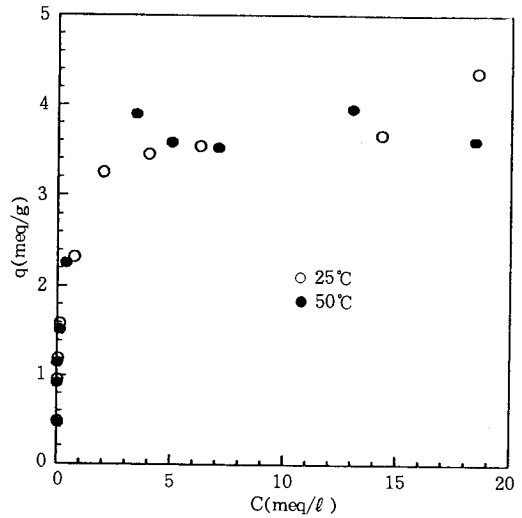


Fig. 5. Equilibrium isotherm of Sr on zeolite 13X with adsorption temperature.

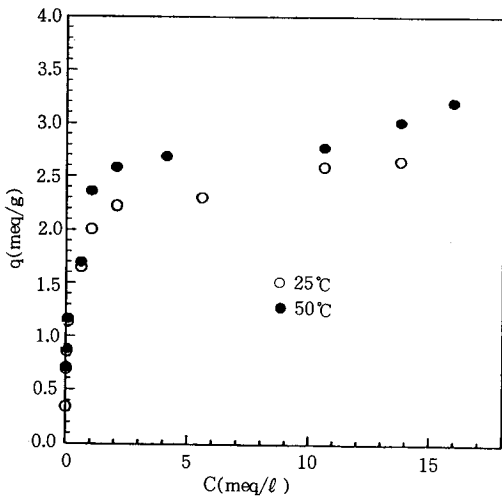


Fig. 4. Equilibrium isotherm of Sr on zeolite 4A with adsorption temperature.

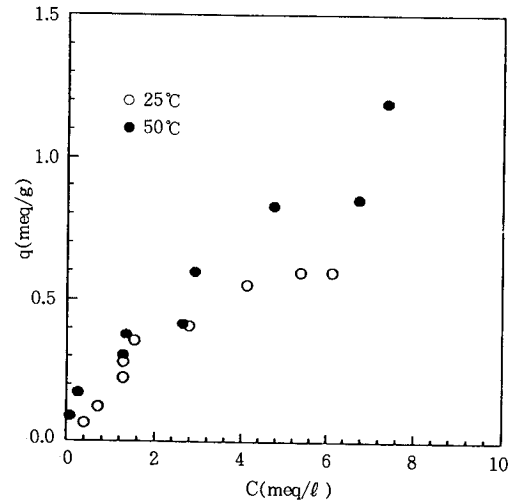


Fig. 6. Equilibrium isotherm of Cs on natural zeolite with adsorption temperature.

Langmuir 등온식을 만족하고 있다. 이는 Langmuir 모델의 기본 가정인 단층흡착(monolayer adsorption) 및 energetic heterogeneity가 존재하지 않는다는 것을 충족시키는 것으로[12] 4A, 13X 제올라이트는 α -cage 내에서, AW300은 tunnel구조의 동공에서, AW500은 타원형(ellipsoidal) 구조의 동공에서 단층의 uniform site에 흡착됨을 보여주고 있다. 4A-Sr 계에서의 지금까지의 연구결과는 Langmuir 등온식을 만족시키는 1단계의 단층흡착과 Langmuir 등온

식을 만족시키지 않는 2단계의 다층흡착(multilayer adsorption) 등 2단계의 흡착과정을 거치는 것으로 발표되고 있으나[13], 이는 용액의 평형농도가 20mmol/l 이상에서 나타나는 현상으로 본 연구에서는 실험범위가 20mmol/l 이내였기 때문에 1단계의 흡착현상만 나타난 것 같다.

3.4. 온도의 영향

온도변화에 따르는 이온교환량의 변화는 Fig. 3, 4,

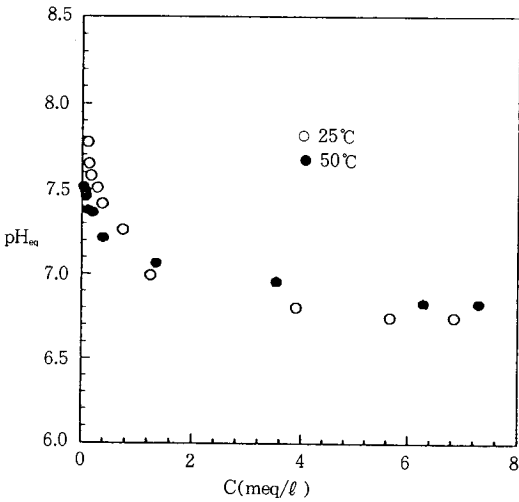


Fig. 7. pH of the solution after equilibration with temperature in the AW500-Cs system.

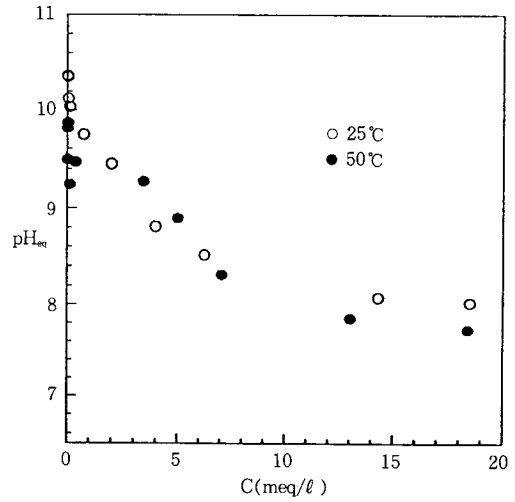


Fig. 9. pH of the solution after equilibration with temperature in the 13X-Sr system.

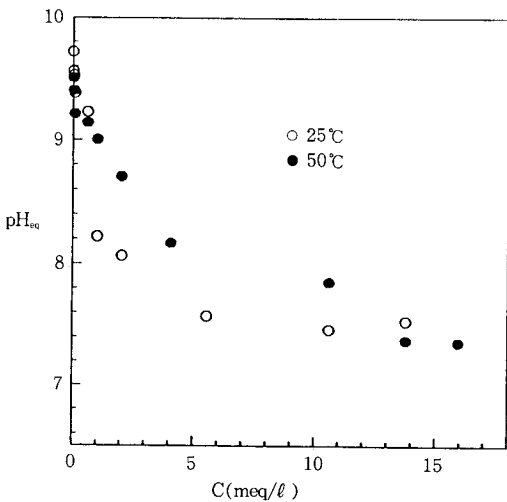


Fig. 8. pH of the solution after equilibration with temperature in the 4A-Sr system.

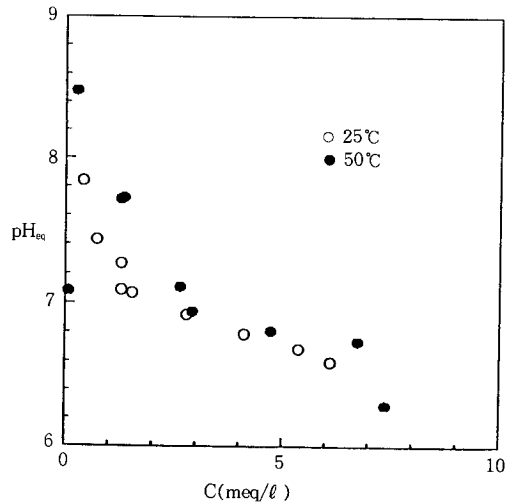


Fig. 10. pH of the solution after equilibration with temperature in the natural zeolite-Cs system.

5 및 Fig. 6에서 보는 바와 같이 4A-Sr계 및 천연산 제올라이트-Cs계를 제외하고는 거의 온도에 영향을 받고 있지 않다.

제올라이트A는 적은 통로(channel)의 구성요소인 β -cage는 동공을 이루고 있는 6 ring들이 이들에 배워되어 있는 Na^+ 이온과 함께 약 2.2Å의 자유구경을 갖고 있으며, 주 통로의 구성요소인 α -cage의 창(window)은 8 ring으로 Na^+ ($r=0.99 \text{ \AA}$) 이온이 위

치하고 있는 4A의 경우, 약 4.2Å의 자유구경을 갖고 있는데[13], 온도가 증가함에 따라서 불충분하지만 6 ring의 창이 조금 개방되어 Sr 이온($r=1.13 \text{ \AA}$)의 출입이 용이하여 이온교환흡착능이 증가하거나, 온도 증가에 의하여 이온의 활동도 등이 증가하여 또는 이온교환소의 비균일 특성(heterogeneous characteristics of ion-exchange site)에 의해 이온교환능이 증가한 것으로 사료된다.

그러나 faujasite type의 13X 제올라이트 경우 주 통로의 구성 요소인 α -cage의 창은 12 ring으로 구성되어 있으며 약 7.4Å의 자유구경을 갖고 있어 [14], 온도에 무관하게 Sr 이온의 출입이 용이하여, 온도증가에 대해서도 이온교환흡착능은 변하지 않는 것으로 생각된다.

Cs 이온에 대한 AW300, AW500 제올라이트의 경우도 13X 제올라이트와 비슷한데, AW300의 mordenite 구조는 12 ring으로 구성된 주 통로의 자유구경이 6.7~7.0Å이고, AW500의 chabazite 구조는 8 ring으로 구성된 주 통로의 자유구경이 약 3.6~3.7 Å이다[9, 14]. 그러므로 AW300, AW500 제올라이트 모두 Cs 이온($r=1.69\text{Å}$)이 온도에 무관하게 출입이 용이하여, 이온교환능이 변하지 않았다. 그러나 천연산 제올라이트의 경우 온도 증가에 따라서 증가하는 경향을 보였으나, 이의 구조적 특성을 규명하지 못해 보다 확실한 분석은 내릴 수는 없지만, 통상 국내에서 생산되는 천연산의 경우는 clinoptilolite, mordenite 및 heulandite의 혼합으로 구성되어 있어 [15], AW300이나 AW500과는 다른 형태의 구조를 갖고 있음을 예측할 수 있다.

이를 재검증하기 위하여 평형용액의 pH와 평형용액의 농도간의 관계를 Fig. 7, 8, 9, 10에 나타내어 본 결과, 4A-Sr계 및 천연산 제올라이트에서는 온도 증가에 따라서 평형용액의 pH가 증가하는 경향을 보이는데 반하여, AW500-Cs계 및 13X-Sr계에서는 온도에 무관함을 나타내었다.

상기결과로부터 Cs 및 Sr이온 분리제거시 4A-Sr계에서는 온도의 영향을 받고 있지만 이온교환장치의 단순화, 운전조업의 용이 및 경제성 등을 고려하여 상온에서 실시함이 보다 효율적이다.

3.5. pH의 영향

제올라이트계에서의 내산성을 고찰하기 위하여, 초기용액의 산도를 염산용액으로 조절하여 초기용액의 산도변화에 따르는 이온교환흡착능의 변화를 Fig. 11과 같이 나타내어 본 결과, 산도가 낮은 영역($\text{pH} < 1$)에서는 각 제올라이트 고유의 제성능보다 매우 감소하는 경향을 보여주고 있는데, 이는 $\text{pH} < 1$ 에서 제올라이트 구조가 파괴되어 양이온교환소가 차단되어 나타나는 현상으로 볼 수 있다.

통상 각종 제올라이트에 대한 내산성은 $10^{-1}\text{mol}/\ell$ 이상의 질산용액에서 구조가 파괴되고, $10^{-2}\text{mol}/\ell$

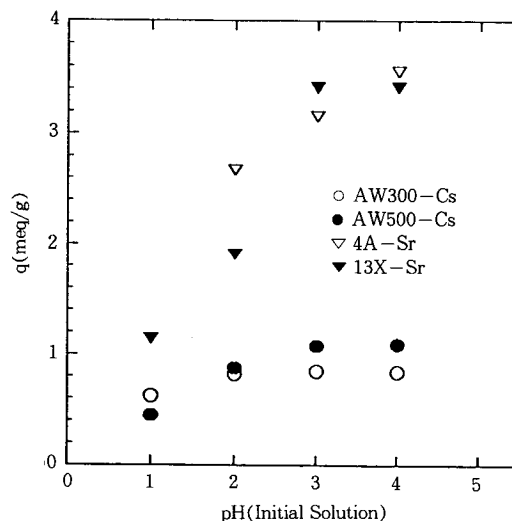


Fig. 11. Effect of initial pH on ion-exchange capacity at 25°C.

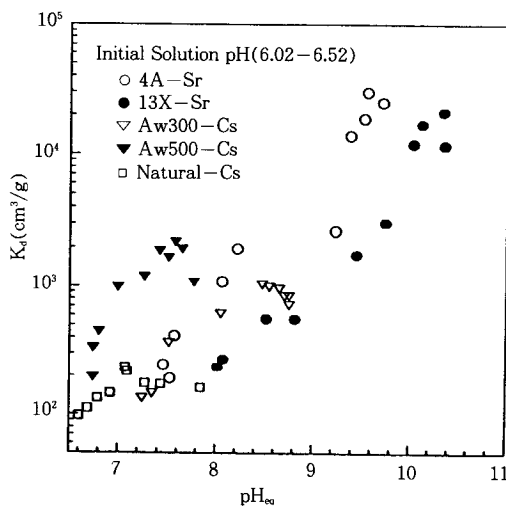


Fig. 12. Effect of pH after equilibration on the distribution coefficient of Cs and Sr.

이하의 질산용액에서는 안정하다는 연구결과[6]와 비슷한 경향으로 AW300-Cs, AW500-Cs 계의 경우는 $\text{pH} > 2$ 에서, 4A-Sr계 및 13X-Sr계는 $\text{pH} > 3$ 에서 조업하는 것이 보다 효율적임을 알 수 있다.

3.6. 분배계수

분배계수와 평형용액의 pH와의 관계를 Fig. 12와 같이 나타내었다. Cs이온에 대한 분배계수는 AW500

이 AW300 및 천연산제올라이트 보다 높았으며 ($K_s > 10^3 \text{cm}^3/\text{g}$), 평형용액의 pH 증가에 따라서 증가하다가 다시 감소하는 경향을 보인 반면에, Sr이온에 대한 분배계수는 평형용액 pH 증가에 따라서 거의 선형적으로 증가하는 경향을 보이며 4A가 13X 제올라이트보다 큰 값을 ($K_{Sr} > 10^4 \text{cm}^3/\text{g}$) 나타내었다.

상기의 경향으로부터 Cs 이온은 AW500 제올라이트에서, Sr 이온은 4A 제올라이트에서 효과적으로 분리할 수 있음을 나타내며, 특히 방사성폐기물 용액에서의 Sr 이온 분리 제거는 용액의 pH 조정이 중요한 요인임을 알 수 있다.

4. 결 론

1. 각종 제올라이트에 대한 Cs 및 Sr이온의 선택도는 25°C에서 Cs 이온의 경우 $\text{AW500} > \text{AW300} > \text{13X} > \text{4A} > \text{천연산}$ 순이며, Sr 이온의 경우 $\text{4A} > \text{13X} > \text{AW500} > \text{AW300} \gg \text{천연산}$ 순이었다.

2. 각종 제올라이트에 대한 Cs 및 Sr이온의 흡착능은 25°C에서 Cs이온의 경우 $\text{AW500} > \text{AW300} > \text{4A} > \text{13X} > \text{천연산}$ 순이며, Sr이온의 경우 $\text{13X} > \text{4A} > \text{AW500} > \text{AW300} \gg \text{천연산}$ 순이었다.

3. AW500-Cs계, AW300-Cs계, 천연산-Cs계 및 4A-Sr계, 13X-Sr계에서의 온도의 영향을 고찰한 바, 천연산-Cs계 및 4A-Sr계를 제외하고는 온도와는 무관한 관계를 나타내었다. 이는 4A-Sr계가 온도 증가에 따라 Sr 이온의 활동도가 증가하거나, multi-layer흡착에 기인한 것 같다. 또한 용액의 산도에 대한 영향은 pH 2 이상에서 조업하는 것이 각 제올라이트 고유의 성능을 유지할 수 있음을 보았고, 평형용액 pH와 분배계수 K_d 와의 관계를 고찰한 바, 평형용액 pH의 증가에 따라서 K_d 값이 증가하는 경향을 얻었으며, 특히 Sr이온 분리하는 용액 내 pH의 적절한 조정이 요구되었다. 그리고 AW500-Cs계가 AW300-Cs계 보다 K_d 값($\sim 10 \text{cm}^3/\text{g}$)이 크고, 4A-Sr계가 13X-Sr계 보다 K_d 값($10^3 \sim 10^4 \text{cm}^3/\text{g}$)이 큰 결과를 얻었다.

4. 천연산 제올라이트를 이용하는 경우, Cs이온에 대해서는 어느 정도의 이온교환능을 갖고 있으나, Sr이온에 대해서는 이온교환능이 합성 제올라이트에 비

해 매우 감소하므로, 경제적 측면을 고려하여 천연산 제올라이트는 Cs 이온의 분리제거에만 선별적으로 사용하는 것이 좋을 것 같다.

참고 문헌

1. 三村均, 山岸功, 秋葉健一, “고준위폐기물에서 제올라이트에 의한 Cs 및 Sr의 선택적 제거”, 동북대학교 핵리엔 연구보고, **21**, 64 (1988).
2. 森良平, 山口五十夫, 久保田益充, “균분리법 개발: Titanic acid, 제올라이트 교환탑에서의 Sr, Cs 이온에 대한 동적 흡착특성” JAERI-M 86-013 (1986).
3. W. Faubel and S. A. Ali, *Radiochem. Acta*, **40**, 49 (1986).
4. E. Blasius and K. H. Nilles, *Radiochem. Acta*, **35**, 173 (1984).
6. J. W. Rolly, “Utilization of zeolites for the removal of radioactive from liquid-waste streams”, ORNL TM-7782 (1981).
7. 三村均, 菅野卓治, 일본원자력학회지, **19**, 113 (1977).
8. M. Skalberg and J. O. Liljenzin, “Partitioning and transmutation-A review of the current state of the art” SKB Tech. Rep. 92-19 (1992).
9. A. P. Bolton, “Molecular sieve zeolites” Union Carbide Catalysts.
10. B. W. Mercer and L. L. Ames, “The adsorption of Cs and Sr on zeolites from multicomponent system”, HW-SA-3199 (1964).
11. H. S. Sherry and H. F. Walton, *J. Phys. Chem.*, **7**, 1457 (1967).
12. F. L. Slejko, “Adsorption Technology”, 10, Marcel Dekker. Inc., New York (1985).
13. L. L. Ames, *Am. Miner.*, **49**, 127 (1964).
14. D. M. Ruthven, “Principle of Adsorption and adsorption processes”, 9, A Wiley-Interscience Publication, New York (1984).
15. 문희수, 유장한, 김종환 등, “비금속 광산연구 (I)” 한국동력자원연구소, KR-86-8 (1986).