

PVP 첨가에 의한 유기-무기 복합흡착제의 성능개선

김형태, 설용진, 문제권*, 정종현*, 이일희*
연세대학교 화학공학과
한국원자력연구소*

Modification of Organic-Inorganic Composite Adsorbents by Addition of PVP

H.T. Kim, Y.G. Shul, J.K. Moon*, C.H. Jung*, E.H. Lee*
Dept. of Chemical Engineering, Yonsei University
Korea Atomic Energy Research Institute*

서론

핵분열 생성물 중 ^{137}Cs 과 ^{90}Sr 은 일반적으로 방사성 폐기물 내에 존재한다. 중금속뿐만 아니라 이들 방사성 핵종은 토양과 지하수의 주 오염원이 되어왔다.

무기이온교환제는 strontium과 cesium 이온 제거를 위해 사용되어져 왔다[1~2]. 특히, 천연 및 합성 zeolite는 특정 이온에 대한 높은 선택성, 열적 및 방사성 안정성 때문에 중금속뿐만 아니라 방사성 폐기물에 적용되어져왔다[3~4]. 이러한 zeolite의 장점에도 불구하고 zeolite는 미세결정 및 분말형태로 사용될 때 압력강하 문제가 발생하여 광범위한 사용에 제한을 받아왔다. 이러한 문제를 해결하기 위해 clay mineral이 zeolite 분말을 pellet 형태로 만들기를 위해 사용되었지만 수용액상에서 용해되는 문제가 발생되었다.

이러한 이유 때문에 유기고분자를 이용한 복합흡착제의 제조에 관한 연구가 활발히 수행되어져왔다[5~9]. 따라서, 많은 유기고분자가 복합흡착제 제조에 사용되어져왔으며 특히, PAN(polyacrylonitrile)은 우수한 성형성, 무기물과의 강한 접착성, 화학적 안정성 때문에 우수한 binder 물질로 알려져 왔다[7,9]

PAN 고분자를 이용한 복합흡착제의 물리·화학적 특성을 평가하는 연구가 수행되어져왔다. Sebesta et al[8]은 PAN 고분자 및 PAN-AMP 복합흡착제가 방사 화학적으로 안정함을 입증하였다. Moon et al[9]은 PAN-potassium titanate와 PAN-nickel hexacyanoferrate 복합이온교환제를 제조하고 strontium과 silver이온에 대한 흡착거동을 평가하였다.

PAN을 이용한 여러 가지 복합이온교환제의 제조 및 평가에 관한 좋은 결과에도 불구하고 물리·화학적 성질과 흡착 거동에 관한 평가가 여전히 요구되어진다.

본 연구에서는 PVP 고분자를 이용하여 PAN-4A 복합흡착제의 기공도를 향상시키고 strontium 이온에 대한 이온교환 거동을 평가하고자 한다.

실험방법

Zeolite 4A의 함량이 80%인 PAN-4A 복합흡착제를 제조하기 위해 4A 일정량을 유기용매인 DMSO(dimethylsulfoxide)에 넣고 분산시켰다. 균일한 복합 dope

를 제조하기 위해 고분자 PAN(polyacrylonitrile)과 계면활성제 TWEEN-80을 넣고 반응온도를 50°C로 유지하면서 교반하였다. 복합 bead의 porosity를 조절하기 위해 고분자 PVP(polyvinylpyrrolidone)를 복합 dope에 첨가하였다. 제조된 복합 dope를 이중 노즐을 통해 gelation agent인 증류수에 떨어뜨려 복합 bead를 제조하였다. PVP를 제거하기 위해 복합 bead를 초순수로 세척하였고 DMSO를 제거하기 위해 10^{-3} torr에서 3일 동안 동결 건조하였다. 제조된 복합 bead의 기공분포와 기공도를 측정하기 위해 mercury porosimeter(Micrometrics, AutoPoreIII)를 사용하였다. 복합 bead의 내부 기공 및 4A의 분포는 SEM(JEOL Co., JSM 5200)에 의해 관찰되었다.

PAN-4A 복합이온교환제의 이온교환 실험은 strontium 이온에 대한 흡착속도를 결정하기 위해 수행되었다. PVP/PAN 비가 각각 0.0, 0.5, 1.0인 PAN-4A 복합 흡착제 1.0g을 0.01N Sr 용액 100mL에 넣고 25°C에서 700rpm 속도로 교반하였다. 시간별로 샘플을 채취하여 0.2 μ m syringe filter로 여과한 후 잔류농도를 AA(Perkin-Elmer, Model 1100B)로 측정하였다.

결 과

복합 bead의 porosity를 증가시키기 위해 PVP 고분자를 PAN-4A 복합 dope에 첨가하였다. PVP/PAN의 비를 각각 0.0, 0.5, 1.0으로 변화시켜 복합 bead를 제조하였다. PAN-4A 복합 bead의 단면과 내부 pore 구조를 SEM을 통해 관찰하였으며 그 결과를 Fig. 1과 Fig. 2에 각각 나타내었다. 복합 bead의 단면 및 내부 pore 관찰 결과, PVP/PAN 비에 의해 방사형 channels과 내부 기공이 잘 형성됨을 확인하였다. 복합 bead의 기공 분포 및 기공도는 mercury porosimeter로 측정되었으며, 그 결과를 Fig. 3과 Table 1에 정리하였다. 평균 기공 분포 및 기공도는 PVP/PAN 비에 비례하여 증가하였다.

PAN-4A 복합이온교환제의 strontium 이온에 대한 속도 실험은 회분식 반응기에서 수행되었다. PVP/PAN 비에 따른 PAN-4A 복합이온교환제의 strontium 이온에 대한 속도 data를 Fig. 4에 나타내었다. 그림에서 보듯이 PVP/PAN 비가 strontium 이온의 흡착 속도에 상당한 영향을 주고있음을 확인하였다. 이 결과는 PVP 함량의 증가로 인한 기공 부피 및 기공 크기의 분명한 변화가 있음을 의미한다. PVP 함량이 증가함에 따라, PAN-4A 복합이온교환제에서 strontium 이온의 effective diffusivity가 3배까지 증가하였다.

감 사

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

1. Mimura, H., Lehto, J. and Harjula, R. : J. of Nucl. Sci. and Tech, 34, 484(1997).
2. Moon, J.K., et al : J. of Hwahak Konghak, 38, 847-852(2000).
3. Liang, T., et al : J. of Radiochimica Acta., 61, 105(1993).
4. Lopez, H., et al : J. of Radioanl. Nucl. Chem. Letters, 200, 19(1995).

5. Mardan, A., Ajaz, R., Mehmood, A., Raza, S.M., and Ghaffar, A.: Separation and Purification Technology, 16, 147(1999).
6. Mariamichel, A., et al : J. of Scientific and Industrial Research, 56, 680(1997).
7. Sebesta, F., et al : "An Overview of the Development, Testing and Application of Composite Absorbers", LA-12875-MS(1995).
8. Sebesta, F., et al : "in Proc. 5th Int. Conf. on Radioactive Waste Management and Enviromental Remediation, Berlin(1995).
9. Moon, J.K., Kim, K.W., Jung, C.H., Lee, E.H., Shul, Y.G. : J. Radio, Nucl. Chem., 246, 299-307(2000).

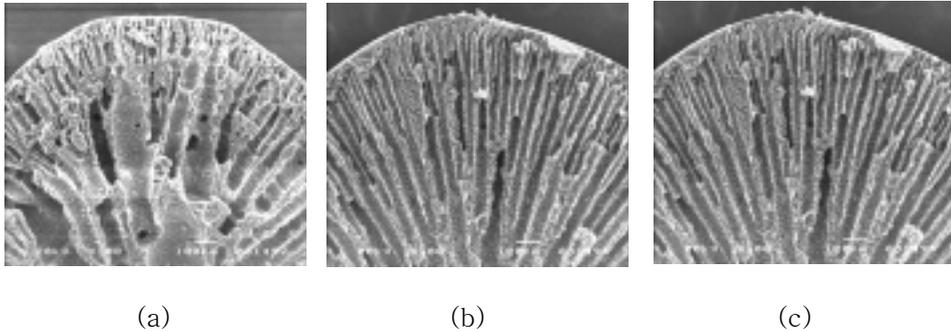


Fig. 1. SEM images of the fracture of PAN-4A beads at the different ratios of PVP/PAN.

(a) PVP/PAN=0.0 (b) PVP/PAN=0.5 (c) PVP/PAN=1.0

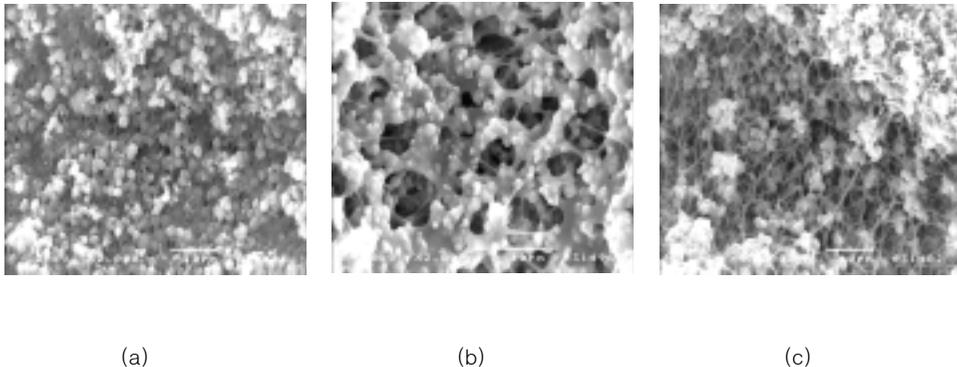


Fig. 2. Inner pore structures of PAN-4A beads for the different ratios of PVP/PAN.

(a) PVP/PAN=0.0 (b) PVP/PAN=0.5 (c) PVP/PAN=1.0

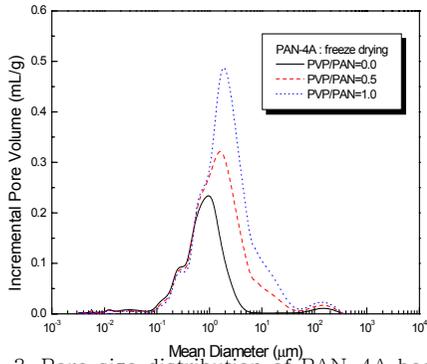


Fig. 3. Pore size distribution of PAN-4A beads for different ratios of PVP/PAN.

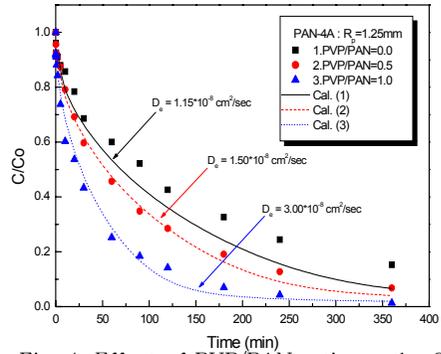


Fig. 4. Effect of PVP/PAN ratio on the Sr ion uptake rate.

Table 1. Porosimeter data of PAN-4A composite bead with the ratio of PVP/PAN.

	PVP/PAN=0.0	PVP/PAN=0.5	PVP/PAN=1.0
Average pore Diameter(μm)	0.1101	0.2142	0.2734
Bulk Density(g/mL)	0.5152	0.3902	0.2737
Apparent Density(g/mL)	1.6335	1.3592	1.0835
Porosity(%)	68.46	71.29	74.75