

스트론튬을 함유한 핵폐액의 나노여과에서 처리효율 향상연구

황의득, 추광호*, 최상준

경북대학교 환경공학과, 대구대학교 건설환경공학부*

Effect of Precipitation and Complexation on Nanofiltration of Strontium Containing Nuclear Wastewater

Eui-Deog Hwang, Kwang-Ho Choo*, Sang-June Choi

Department of Environmental Engineering, Kyungpook National University

Department of Environmental Engineering, Taegu University*

1. 서론

원자력산업에서 발생하는 중·저준위 방사성 액체폐기물의 대부분은 ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{137}Cs 과 같은 중·장반감기 핵종과 Na, K, B등과 같은 다량의 비방사성 화학종 그리고 기타 단반감기 핵종을 함유하고 있다. 이러한 액체폐기물은 주로 증발농축 공정과 이온교환 공정에 의해서 처리되고 있지만 비방사성 염이 함께 농축되는 등 여러 공정상의 문제점을 지니고 있다. 기존공정의 효율을 향상시키기 위해서는 폐액내에 존재하는 물질 중 처리의 주요 대상이 되는 방사성 및 유해성 물질을 비유해성 물질로부터 선택적으로 분리하여 농축함으로써 부피감량과 오염물질 제거의 두 목표를 달성하여야 한다. 이를 위한 접근방법 중 최근에 주목받는 기술 중의 하나는 막분리법이다.

그러나 적용될수 있는 분리막 중 역삼투막은 방사성 염뿐만 아니라 Na^+ 과 같은 1가의 염도 투과시키지 않고 농축시키므로 선택성이 없고 한외여과막은 핵종과 일가의 염을 모두 투과시키므로 전처리가 요구된다.

따라서 본 연구에서는 방사성 핵종과 Na^+ 및 붕산과 같은 비방사성 핵종을 선택적으로 분리할 수 있는 나노여과 공정을 도입하여 다양한 운전조건과 수질화학적 인자의 변화가 처리효율에 미치는 영향을 고찰하였다.

2. 실험

본 실험에서는 유효 막면적 25cm^2 의 평판형 막모듈을 사용하였다. 막분리 실험은 교차흐름으로 진행하였으며, 투과수와 농축수를 모두 유입수조로 되

돌리는 전순환방식으로 운전하여 시간에 따른 농도 변화가 없도록 하였다. 막투과압력과 교차흐름 유량, 수온은 실험 기간동안 각각 4.9 bar, 1m/sec (1.5 L/min), $20 \pm 2^\circ\text{C}$ 로 일정하게 유지했다. 모의 방사성폐액의 pH는 5에서 9까지 변화시켜가며 실험했으며 Sr의 분리효율을 높이기 위해서 착물형성제를 사용하였다.

실험에 사용된 분리막은 Nitto Denko사의 NTR7410, NTR7250, 729HF이며 인공 유입폐수의 제조를 위해서 Aldrich Chemicals사의 시약급 시약을 사용했으며, 탈이온화 증류수를 사용하여 회석하였다.

스트론튬, 붕소, 나트륨의 농도와 pH를 변화시키며 유입수와 투과수의 농도변화를 시간별로 측정하여 제거율을 계산하였다. 스트론튬과 나트륨은 AA(Varian Spectra AA-250 Plus), 붕소는 ICP(Jobin-Yvon 38plus ICP Emission Spectrometer)를 이용하여 측정하였다.

3 결과 및 토론

분리막의 종류가 Sr제거율에 미치는 영향을 살펴보았는데 분리막에 따른 제거율의 차이는 분리막의 투과도를 나타내는 NaCl의 제거율과 유사한 경향을 보이고 있다.(Fig. 1)

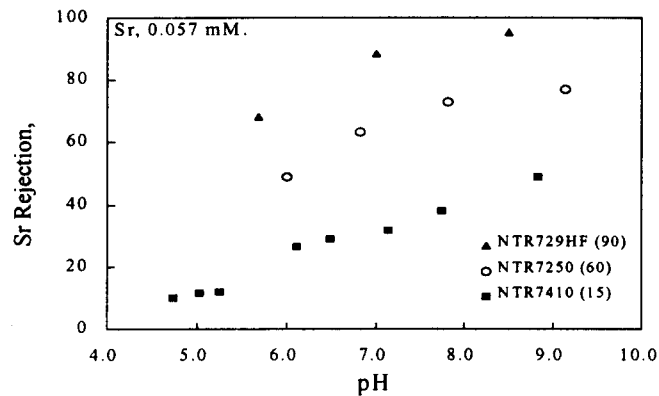


Fig. 1 Effect of membrane types on Sr rejection

분리막 종류에 관계없이 거의 모든 경우에 pH가 증가할수록 Sr의 제거율이 증가하고 있는데 이는 수중에 존재하는 CO_3 와 Sr이온이 SrCO_3 형태로 침전을 형성하기 때문으로 생각된다. 수중의 탄산이온이 Sr의 제거율 증가에 기여하는 정도를 알아보기 위해 모의 방사성폐액의 pH를 4까지 떨어뜨

린 후 급속교반을 실시하여 수중의 탄산이온을 제거하고 질소주입(N_2 purging)을 통해 대기와의 접촉을 차단한 후 pH를 높여가며 실험을 수행하였다. Fig.2에서 질소주입을 실시한 경우 pH가 증가함에 따라 Sr이온 제거율의 증가폭이 감소하였는데 제거율의 차이는 약 30%정도이었다. CO_2 제거 후 질소주입을 실시했을 때 pH가 증가함에 따라 제거율이 증가하는 것은 분리막의 높은 표면전하에 기인한 것으로 판단된다.

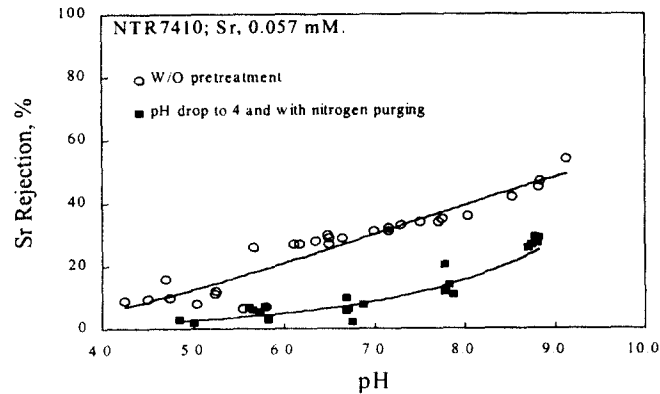


Fig 2. Effect of Carbonate species on Sr rejection

나노여과공정에서 Sr의 분리효율을 높이기 위해서 착물형성을 시도하였는데 착물형성제로 분자량 5100의 poly(acrylic acid)을 이용하였다. Fig. 3에 착물형성제를 주입했을때의 Sr 제거율의 변화를 나타내었는데 pH 6이상에서 Sr 제거율이 급격하게 증가하였다. 이것은 PAA의 고분자 리간드인 카르복실기($-COOH$, $pK_a=4\sim 5$)가 pH 6이상에서 deprotonation 되고 H^+ 대신 Sr이 결합하여 착물을 형성하기 때문이다. 즉 고분자의 긴사슬이 막에 의해 배제됨으로써 막세공의 크기에 의한 물리적 배제(steric rejection)가 증가하기 때문이다.

Fig. 4에 PAA를 주입했을 때 무해성염의 제거율이 나타나 있는데 무해성염의 제거율은 PAA를 주입했을 때 30%로 이하로 방사성핵종과 무해성염을 선택적으로 분리할 수 있었다.

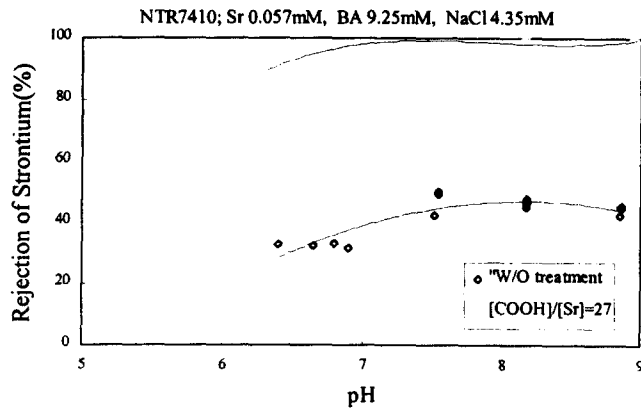


Fig. 3 Improvement of Sr rejection using complexing agent

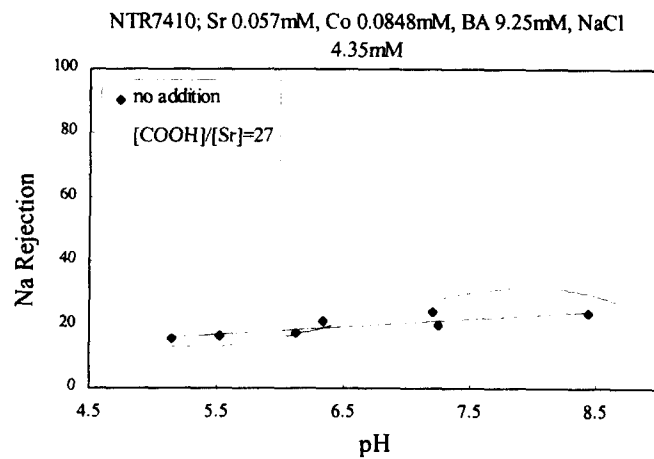


Fig. 4 Effect of complexing agent on non-hazardous salt rejection

4 참고문헌

1. J.M.M. Peeters, J.P. Boom, M.H.V. Mulder, H. Strathmann, "Retention measurements of nanofiltration membranes with electrolyte solutions", Journal of Membrane Science 145, 199-209 (1998).
2. E.GAUBERT, H.BARNIER "Selective strontium removal from a sodium nitrate aqueous medium by nanofiltration-complexation" Separation Science and Technology, 32(1-4), 585-597 (1997).