

## Agglomeration을 이용한 미세토양의 Co 및 Cs 용출제염에 관한 기초연구

이정준, 김계남, 정윤희, 문제권, 정종현

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150)

ijlee@kaeri.re.kr

### 1. 서론

원자력시설에서 발생하는 오염토양의 제염을 경제적, 효과적으로 수행하기 위해, Heap leaching 기술의 이용을 검토하였다. Heap leaching은 중금속오염토양이나 우라늄 광미의 정화를 위해 이용되어져 왔고, 건조-체분리-응결-Heap leaching의 공정을 포함한다. 응결 공정은, 오염토양 퇴적더미에 용출제를 trickling 했을 때, 토양미립자에 의한 공극의 막힘현상의 발생으로 제염이 저해되기 때문에, 미세입자를 응결제와 혼합, 응결시켜 용출시키기 위해 필요하다. 한편, 기존의 오염토양의 제염을 위한 토양 세척기술에서도 미세토양의 제염이 어려운 것으로 보고되었다. 본 연구에서는, Heap leaching 기술의 이용을 검토하기 위한 기초적 단계로, 응결 조작이 필요한 토양입경, 응결을 위한 최적 응결제 및 그 함량 등을 결정하기 위해 Lab-scale test를 수행하였다. 또한, Column test를 통하여 응결된 오염토양의 Co 및 Cs 제염효율을 검토하였다.

### 2. 실험방법 및 결과

#### 2.1 인공오염토양의 조제

토양으로부터 Co 및 Cs의 제염을 평가하기 위해, 원자력시설 주변부지에서 채취한 토양에 0.01M의  $Co^{2+}$  및  $Cs^+$  혼합용액을 건조토양에 L/S=0.4의 비율로 혼합하여 주기적으로 교반하면서 건조시켰다. 이때, 조제된 인공오염토양의 Co 및 Cs 함유량은 235.7 mg-Co/kg-soil, 531.6 mg-Cs/kg-soil이었고, 이는 각각 4 mM/kg-soil에 해당한다.

#### 2.2 체분리 및 입경별 투수계수 예측

Fig. 1은 TRIGA 주변 야산에서 채취한 토양의 입경누적분포곡선을 보이고 있다. 입경조사 결과, 이 토양은 sandy soil로 나타났으며, Heap leaching 기술에 적용할때 용출제의 투수성을 저해하지는 않을 것으로 판단되었다. 그러나, 방사능오염토양의 입경분포의 다양성 등을 고려하여, 투수성에 저해를 줄 수 있다고 판단되는 토양 미세입자(silt, clay)를 대상으로 Co 및 Cs의 제염을 평가할 필요가 있기 때문에, 위 토양의 입경범위에 따른 투수계수를 Hazen식을 이용하여 계산하였다. 그 결과, 입경이 0.425mm이하인 토양의 투수계수가  $10^{-5}$  cm/sec 이하로 나타나, 응결을 통한 투수성의 증대가 요구되는 것으로 판단되었다. 여기서, 투수계수  $10^{-5}$  cm/sec 이하인 입경을 응결대상으로 선정한 이유는, 기존의 문헌(오염토양중 중금속의 칼럼용출제거, Heap leaching에 의한 중금속 및 우라늄의 제거)에서 칼럼실험 및 heap leaching 공정에서 이용한 투수성 ( $10^{-2} \sim 10^{-1}$  cm/sec)을 참고하였다. 본 연구에서는, 입경이 0.425mm이하인 토양을 대상으로 응결조작을 수행하여 Co 및 Cs의 용출현상을 파악하였다.

#### 2.3 최적 응결제 및 함량 선정

기존의 연구에서 사용된 응결제인 Starch, Vinyl acetate, Vinyl amide, Acryl amide, Sodium carboxymethylcellulose, Sodium silicate를 이용하여 토양과의 혼합비를 0.5%, 1%, 2%, 5%, 10%, 20%로 하여 수분을 적당히 가해

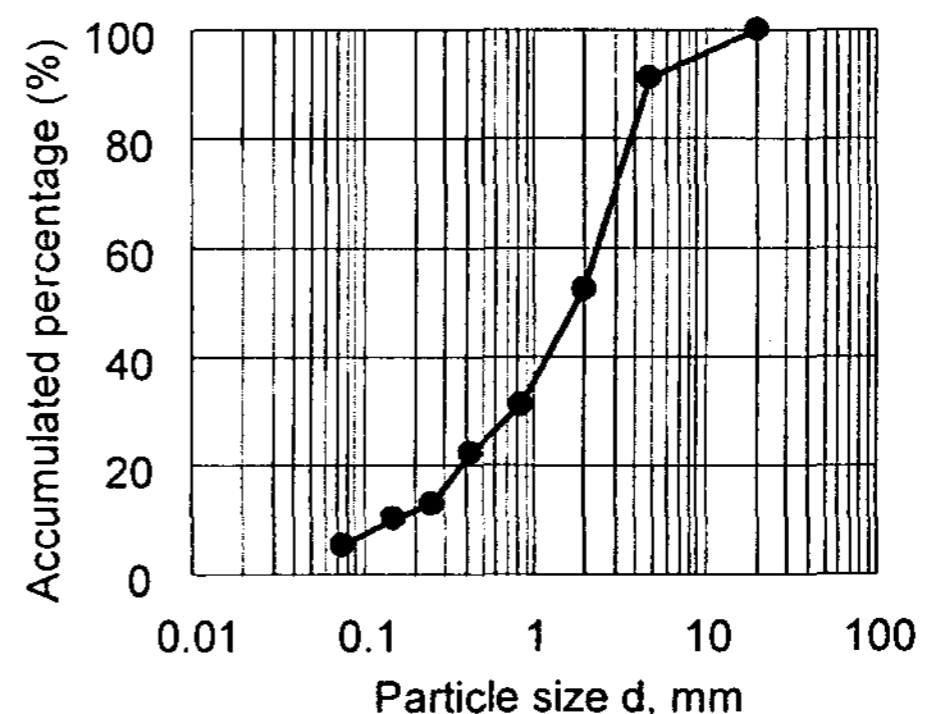


Fig. 1. Particle size distribution of the soil used in this study

주면서 응결시켰다. 응결된 토양을 건조시킨후, 수용액에 침적시켜 응결입자의 용해(파괴) 정도를 평가하였다. 그 결과, Sodium silicate를 2% 비율로 혼합시켜 응결시켰을 때, 응결입자가 재용해 또는 파괴되지 않는 최소한의 혼합비로 조사되었다. Figure 2는 0.425mm이하의 토양을 2%의 Sodium silicate와 혼합, 응결시켜 건조한 후, 입경의 변화를 보여주고 있다. 응결에 의한 전체적인 입경의 증가가 확인되어, heap leaching 또는 칼럼실험시 투수성을 원활하게 할 것으로 여겨졌다.

2.4 응결시료의 soaking test

응결시료로부터, Co 및 Cs의 용출에 있어서, 입자의 조립화에 의한 용출액 체류시간의 증가가 요구될 것으로 판단된다. 따라서, 응결시료로부터 용출하는 Co 및 Cs에 대한 용출액의 체류시간을 평가하기 위해 Soaking test를 시행하였다. 응결 토양 70g을 0.1M의 옥살산 1,400ml에 침적시켜, 시간에 따라 10ml씩 용액을 채취하여 Co 및 Cs 농도를 측정하였다. 그 결과, 응결시료에서의 Co 및 Cs의 용출에는 1일 이상의 용출제 체류시간이 필요한 것으로 나타났고, 그때의 Co 및 Cs의 용출율은 각각 94%, 31%로 나타났다.

2.5 응결시료의 column leaching test

Heap leaching을 이용한 응결시료의 Co 및 Cs 제거를 평가하기 위해, 0.01M의 옥살산을 이용하여 칼럼용출실험을 수행하였다. 약 20여일간의 실험결과, Co는 99%이상, Cs은 44%가 용출/제거 되는 것으로 나타났다. 칼럼용출실험에서 용출액의 부피를 저감하는 것과 동시에 Co 및 Cs의 제염효율을 극대화시키는 운전조건(용출제유입/유출속도 등)의 결정이 필요할 것으로 여겨진다.

3. 결론

미세오염토양의 Co 및 Cs의 제염을 위해서는 0.425mm이하의 입경, 즉,  $10^{-5}$  cm/sec 이하의 투수계수를 갖는 입경이 응결의 대상이 되는 것으로 조사되었다. 또한, Sodium silicate를 2% 비율로 혼합, 응결시켰을 때, 응결입자가 재용해 또는 파괴되지 않는 것으로 조사되었고, 응결에 의한 전체적인 입경의 증가가 확인되었다. 응결시료의 Soaking test를 시행한 결과, Co 및 Cs의 용출에는 1일 이상의 용출제 체류시간이 필요한 것으로 나타났고, 그때의 Co 및 Cs의 용출율은 각각 94%, 31%로 나타났다. 약 20여일간의 칼럼용출실험결과, Co는 99%이상, Cs은 44%가 용출/제거 되는 것으로 나타났다.

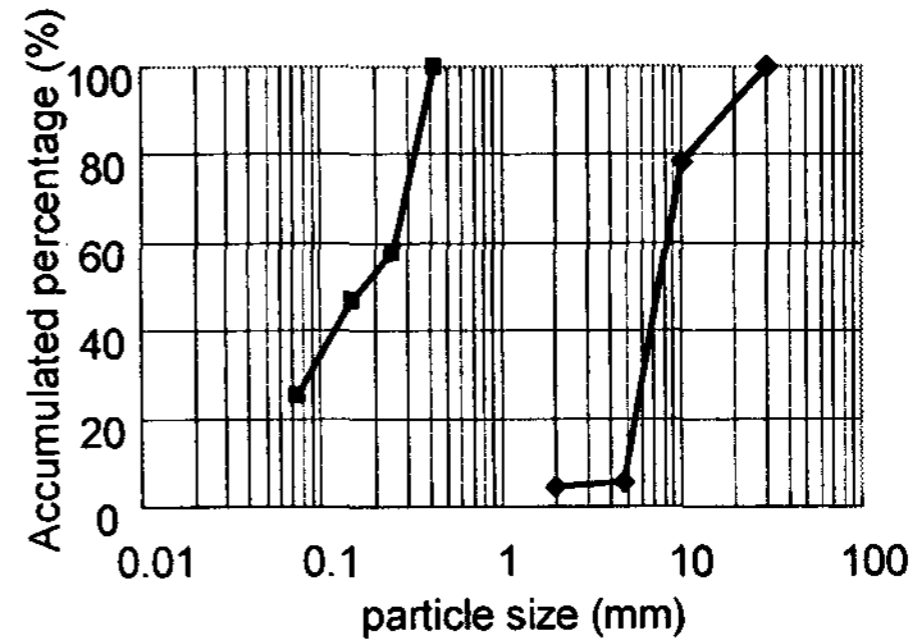


Fig. 2. Particle size distribution before and after agglomeration (less than 0.425mm)

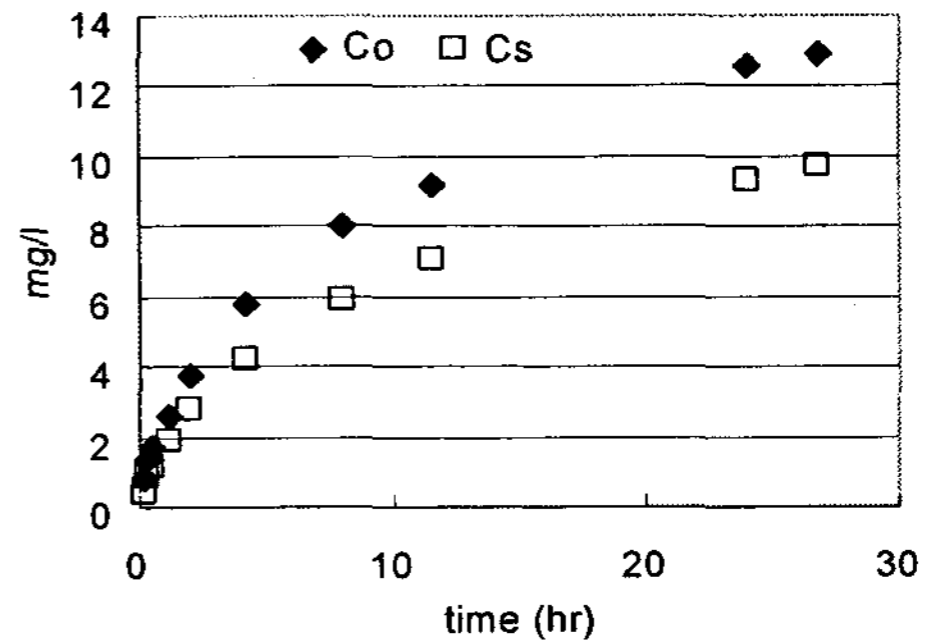


Fig. 3. Variation of Co and Cs leaching concentration from agglomerated soil by 0.1 M oxalic acid

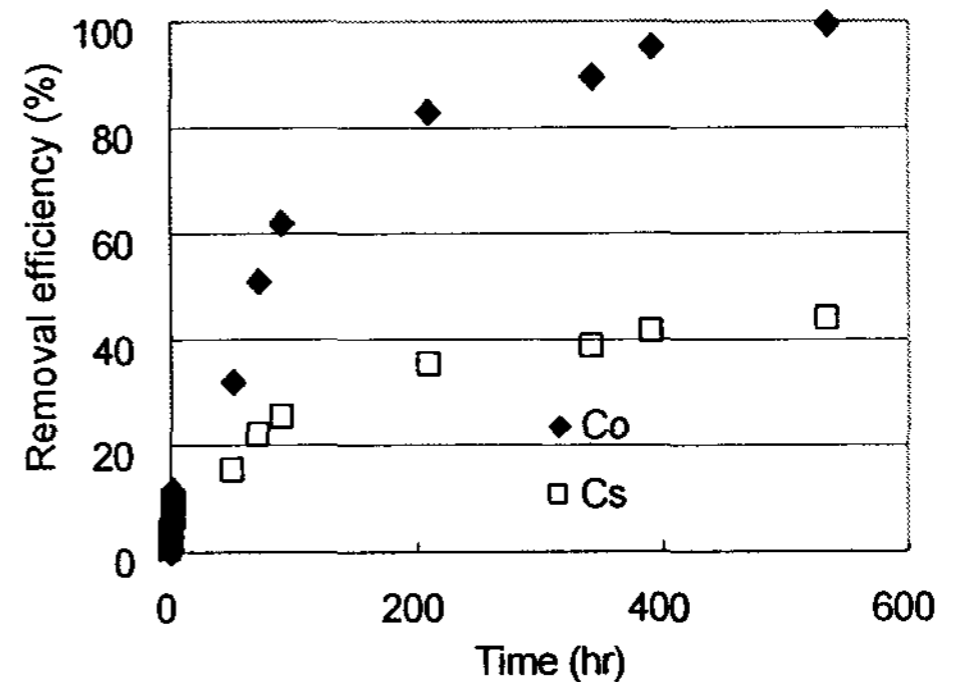


Fig. 4. Removal efficiency of Co and Cs from the column packed with agglomerated soil by 0.01 M oxalic acid