

전기화학용출에 의한 방사성 콘크리트제염 연구

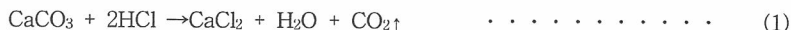
김계남, 양병일, 최왕규, 민병연, 이근우, 정운수
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 kimsun@kaeri.re.kr

1. 서론

본 연구에서는 방사성폐기물 드럼 속의 방사성 콘크리트를 드럼에서 꺼내어 파쇄기로 0.5cm 이하로 파쇄한 뒤에 방사성도양과 같이 전기화학용출방법으로 제염하기 위해 여러 번 전기화학용출 실험을 수행 하였으나 제염효율이 평균 50%이하였다. 가장 큰 원인은 콘크리트의 pH가 6이상이기 때문에 콘크리트 내의 ^{60}Co 가 수산화물을 형성하여 콘크리트로부터 분리 제거할 수 없기 때문이었다. 그러므로 세척방법과 전기화학용출방법을 복합한 복합제염방법을 사용하였다. 먼저 황산을 사용한 세척방법에 의해 콘크리트입자의 pH를 저하시키고 동시에 상당량의 ^{60}Co 과 ^{137}Cs 을 제거하였다. 다음으로 콘크리트 내의 ^{60}Co 과 ^{137}Cs 의 제거효율을 증가시키기 위해 전기화학용출방법을 사용하여 제거효율을 90%이상 높였다.

2. 전기화학용출실험

실험결과 전기화학용출으로는 콘크리트로부터 코발트를 제거하는 것은 불가능함을 알 수 있었다. 그러므로 전기화학용출실험 전에 황산을 사용하여 콘크리트를 세척하여 콘크리트를 구성하는 시멘트의 주성분인 CaCO_3 를 CO_2 로 분해하여 콘크리트의 pH를 4이하로 저하시킨 후 전기화학용출실험을 수행했다. 즉, 먼저 3.0M의 황산을 1.5 mL/g 비율로 모의오염 콘크리트와 혼합조에서 혼합하고 4시간 동안 scrubbing시켰다. 이때, 콘크리트 내의 시멘트는 황산과 반응하여 CO_2 로 분해되면서 콘크리트 입자의 pH가 4이하로 감소되었다. 혼합물로부터 황산용액을 제거하고 콘크리트입자 만을 앞에서 사용한 1 L규모 전기화학용출장치에 넣고 0.01 M 질산을 세정제로 사용하고 전압을 4 V/cm로 가하여 전기화학용출 실험을 14.83일간(세척시간 포함 시 : 15일) 수행했다. 이때, 앞의 실험과는 달리 전극의 위치를 토양 전기화학용출실험 때와 같이 왼쪽을 양극으로 오른쪽을 음극으로 정했다. 왜냐하면, 황산으로 전처리 된 콘크리트 입자의 pH가 낮아져 콘크리트입자의 제타포텐셜이 음으로 바뀌어 전기삼투에 의한 콘크리트 셀 내의 세정제가 음극으로 이동했기 때문이다. 1 L규모 전기화학용출장치 콘크리트셀에 황산에 의해 pH가 4 이하로 낮아진 콘크리트 1,600 g을 넣고 전기화학용출 제염실험을 수행했다. 이때 주기적으로 음전극실로부터 방출되는 침출용액 방출량과 침출용액 농도를 AA로 측정했다. 또한, 음전극실의 침출세정제의 pH 상승을 낮추기 위해 질산을 주입하였다. 15일 간의 복합제염 실험을 마친 후 콘크리트셀 내의 콘크리트를 6등분하여 약 10 g 씩 샘플링하여 건조시켰다. 시멘트 내의 석회석과 황산의 반응식은 (1)과 같다.



3. 결과 및 토의

앞의 실험결과 전기화학용출만으로는 콘크리트로부터 코발트를 제거하는 것은 불가능하므로 전처리 개념으로 황산을 사용하여 콘크리트를 세척하여 콘크리트 내의 시멘트를 CO_2 로 분해제거한 후 콘크리트 입자의 pH를 측정된 결과 3.9이었다. 이와 같이 콘크리트의 pH가 6이하이므로 전기화학용출방법에 의한 코발트 제거가 가능하리라 사료되었다. 이 혼합물로부터 황산폐액을 분리하고 콘크리트입자만을 앞에서 사용한 1L규모 전기화학용출장치의 콘크리트셀에 넣어 전기화학용출 실험을 14.83일간 수행한 결과 코발트이온과 세슘이온은 각각 99.8%와 99.3% 제거되었다. 콘크리트 내의 코발트와 세슘은 황산 세척에 의해 4시간 동안 각각 89.0%와 38.3% 제거되었고 전기화학용출에 의해 제거량이 서서히 증가했다. 이와 같이 전기화학용출에 의해 코발트와 세슘은 서서히 제거되었다. 한편 콘크리트 제염 폐액발생량은 황산 세척 시 2.4 L(1.5 mL/g)이고, 전기화학용출시는 초기에는 다량의 폐액이 발생되었지만 서서히 발생량은 감소했다. 그러나 전반적으로 콘크리트의 수리전도도가 크기 때문에 폐액발생량도 토양 전기화학용출시 보다 많은 9.15 L(5.7 mL/g)이 발생되어 복합제염 결과 총 11.55 L(7.2 mL/g)의 콘크리트 제염폐액이 발생되었다. 이 콘크리트 폐액발생량은 세척방법만으로 제염할 경우 발생할 폐액부피의 약

1/5 정도이다. 한편, 발생된 콘크리트폐액은 증발조에서 증발시켜 처리할 계획이다. 또한 연구원에 보관 중인 방사성 콘크리트에 대한 실증실험 결과는 Fig. 1과 같았다. 즉, 초기 ^{60}Co 와 ^{137}Cs 총 오염농도가 500 Bq/kg, 1,000Bq/kg, 2,000Bq/kg, 3,000Bq/kg 인 콘크리트를 100 Bq/kg이하로 낮추기위해 필요한 제염시간은 각각 10일, 15일, 25일, 35일 이었다.

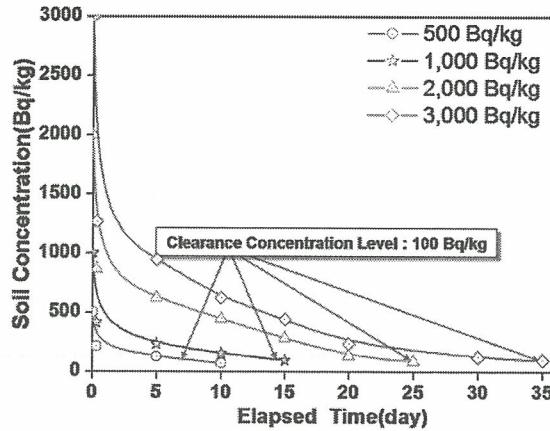


Fig. 1. A total concentration of ^{60}Co and ^{137}Cs along elapsed time by electrokinetic decontamination

4. 결론

3.0 M의 황산을 사용하여 콘크리트를 4시간(0.17일) 동안 세척하여 줌으로 콘크리트 내의 시멘트가 CO_2 로 분해 제거되어 콘크리트입자의 pH가 3.9로 낮추어졌고, 콘크리트 내의 코발트와 세슘은 황산세척에 의해 각각 89.0%와 38.3% 제거되었다. 다음으로 콘크리트입자만을 1 L규모 전기화학용출장치를 사용하여 전기화학용출 실험을 14.83일간 수행한 결과 코발트이온과 세슘이온은 각각 총 99.8%와 99.3% 제거되었다. 실증실험 결과 초기 ^{60}Co 와 ^{137}Cs 총 오염농도가 500 Bq/kg, 1,000Bq/kg, 2,000Bq/kg, 3,000Bq/kg 인 콘크리트를 100 Bq/kg이하로 낮추기위해 필요한 제염시간은 각각 10일, 15일, 25일, 35일 이었다.

REFERENCE

1. Popov, K. Glazkova, I. Yachmenev, V. Nikolayev, A. : Elektokintic remediation of concrete: effect of chelating agents, Environmental Pollution, Vol. 153, pp. 22-28 (2008).
2. Harris, M. T. Depaoli, D. W. Ally, M. R. : Modeling the electrokinetic decontamination of concrete, Separation Science and Technology, Vol. 32, pp. 827-848 (1997).
3. Harris, M. T. Depaoli, D. W. Ally, M. R. : Investigation of electrokinetic decontamination of concrete, Separation Science and Technology, Vol. 32, pp. 387-404 (1997).