J. of the Korean Radioactive Waste Society
Vol.7(3), P. 153-160, Sept. 2009.

Optimum Remediation Conditions of Vertical Electrokinetic-Flushing Equipment to Decontaminate a Radioactive Soil

방사성토양 복원을 위한 수직형 동전기-세정장치의 최적제염조건 도출

Gye-Nam Kim[1], Byeong-IL Yang, Jei-Kwon Moon and Kune-Woo Lee
Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeokdaero, Yuseong-gu, Daejeon, Korea

김계남[1], 양병일, 문제권, 이근우
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

(Received April 03, 2009 / Revised June 14, 2009 / Approved June 30, 2009)

Abstract

Vertical electrokintic-flushing remediation equipment was developed for the remediation of a radioactive soil near nuclear facilities. An optimum reagent was selected to decontaminate the radioactive soil near nuclear facilities with the developed vertical electrokintic-flushing remediation equipment, and the optimum remediation conditions were established to obtain a higher remediation efficiency. Namely, acetic acid was selected as an optimum reagent due to its higher remediation efficiency. When the electrokinetic remediation and the electrokinetic-flushing remediation results were compared, the removal efficiency of 4.6 % and the soil waste solution volume of 1.5 times were increased in the electrokinetic remediation. When the potential gradient within an electrokinetic soil cell was increased by two times (4.0 V/cm), the removal efficiencies of Co^{2+} and Cs^{+} were increased by about 4.3%(Co^{2+} : 98.9%, Cs^{+} : 96.7%). Also, when the reagent concentration was increased from 0.01 M to 0.05M, the removal efficiency of Co^{2+} was increased but that of Cs^{+} was decreased. Therefore, the optimum remediation conditions were that the acetic concentration was 0.01M~0.05M, the potential gredient was 4 V/cm, the injection of reagent 2.4 ml/g, and the remediation period was 20days.

Key words : Vertical electrokinetic-flushing, Cobalt, Cesium, Radioactive soil, Removal efficiency

요 약

방사성 토양을 복원하기 위해 원자력시설 주변 부지의 수리지질 특성을 분석하여 국내 방사성 토양 복원에 적합한 수직형 동전기세정장치를 개발하였다. 또한, 이 수직형 동전기세정장치를 이용한 실험을 통해 원자력시설 주변 방사성토양을 복원하기 위한 최적 세정제를 선정하고 단기간에 높은 제거효율을 확보할 수 있는 최적제염조건들을 도출하였다. 초산을 세정제로 사용하였을 때 토양으로부터 코발트와 세슘의 제거효율이 가장 높으므로 동전기제염을 위한 최적 세정제로 초산을 선정하였다. 동전기세정제염 시 세정제 주입

1) Corresponding Author. E-mail : kimsum@kaeri.re.kr

량을 증가 시켰을 때 토양으로부터 코발트와 세슘의 제거효율은 평균 약 4.6% 제거효율이 증가했고 토양폐액 발생량도 동전기제염의 1.5배인 2.4 mL/g이었다. 동전기토양셀의 전압구배를 2배로 증가시켜 4 V/cm를 적용시켰을 때, 코발트와 세슘의 제거효율은 각각 98.9%와 96.7%로 평균 약 4.3% 제거효율이 증가했다. 그리고 세정제 농도를 0.01M로부터 0.05M로 증가시킨 후 제염실험 결과 코발트의 제거효율은 상승했지만 세슘의 제거효율은 감소하였다. 위 실험결과 개발한 수직형 동전기세정장치의 최적제염조건으로 제염시간은 20일 동안 초산 0.01M~0.05M을 세정제로 사용하여 동전기토양셀의 전압구배는 4 V/cm를 가하고, 2.4 mL/g의 세정제를 주입하는 것이다.

중심단어 : 수직형 동전기세정, 코발트, 세슘, 방사성토양, 제거효율

I. 서 론

국내 원자력시설은 대부분 단단한 사암 위에 건설되었기 때문에, 원자력시설에서 보관하고 있는 방사성토양은 많은 모래를 포함하여 투수계수가 높다. 따라서 국내 원자력시설 폐기물저장고에 보관 중인 방사성 토양에 적합한 제염방법으로는 동전기방법과 토양세정방법의 장점을 살린 동전기세정방법이 이 토양의 특성에 적합한 기술이라고 사료된다[1]. 동전기세정장치가 동전기장치와 다른 점은 동전기세정장치는 장치에 부착된 가압시스템에 의해 좀 더 많은 세정제를 동전기토양셀에 주입하여 토양을 동전기제염과 동시에 세정시키는 것이다.

동전기방법은 투수능이 낮은 토양에서 높은 제거효율을 나타내므로 점토층의 오염토양 복원에 효과가 있다[2-3]. 동전기기술에 있어서 오염물을 이동시키는 주요 원인은 이온물질의 전기이동과 전기삼투이며 전기이동은 투수계수가 큰 토양이나 이온물질의 농도가 높은 경우에 효과적이다[4]. 음극은 pH를 낮추어 수산화물의 형성을 방지해야 하며 선정된 세정용액은 토양 내에서 유리한 pH를 유도하고 중금속이동이 원활하도록 중금속과 반응 할 수 있는 것이어야 한다[5]. 전기이동과 전기삼투에 의한 이동속도의 크기는 전압구배에 비례한다. 그러므로 제염효율은 양수에 의한 전압구배의 증가를 통해 향상될 수 있으나 매우 높은 전압 적용 시 전극이 용해되는 문제점도 있다. 최근 이 방법을 지중오염물질을 제거할 때 적용할 수 있는 지에 관해 연구되어왔고 미세토양을 동전기제염 할 때의 문제점에 대해 논의해 왔다[6-8].

한편, 최근 토양내의 오염물질이 탈착과 용해에 의해 액체상태로 제거되는 토양세정기술이 개발되어 왔고, 물, 산, 염기, 킬레이트제, 알코올 등의 첨가제가 세정용액으로 고려되어 왔다[9-10]. 토양세척방법이나 토양세정방법에서 제염제로 산이나 킬레이트제를 이용한 방법이 가장 효율적이며[11-12], 최근에는 동전기 제염 시 토양내의 금속제거효율을 높이기 위해 전해용액으로 초산이나 sodium dodecyl sulfate를 사용했다[13-14]. 한편, 지금까지 동전기장치는 거의 수평형으로 제작되어 왔다. 그러나 수평형 동전기장치는 토양셀 내부의 pH변화에 따라 전기삼투 흐름방향이 역류되어 양극 전극실 내의 용액이 방사능으로 오염될 수 있고, 토양셀 중앙부에 불포화층이 형성되어 제거효율이 감소한다. 따라서 본 연구에서는 위의 문제점을 해소하기 위해 수직형 동전기장치가 제작하고 최적제염조건을 도출하고자 한다.

본 연구에서는 원자력시설 주변 오염토양을 복원하기 위해 원자력시설 주변부지에서 채취한 토양의 수리지질 파라미터를 측정하여 국내 토양 수리지질 특성에 적합한 수직형 동전기세정장치를 개발하였다. 또한, 토양 특성에 적합하게 제작한 수직형 동전기세정장치를 이용한 실험을 통해 원자력시설 주변 토양을 복원하기 위한 최적 세정제를 선정하고 단기간에 높은 제거효율을 확보할 수 있는 최적제염조건들을 도출하였다.

II. 토양 수리특성조사 및 제염실험

가. 원자력시설 주변 토양 수리인자 측정

실험토양은 원자력연구원이 보관하고 있는 방사성 오염토양을 굴착한 지역 주변 부지에서 채취한 토양을 사용했다. 채취 토양은 대부분 단단한 사암층에 위치하므로 수리전도도가 높았다. 실험에 사용된 토양의 표면으로부터 깊이별 포화도와 수리파라미터 측정결과는 Table 1과 같고 Table 2는 토양입자크기 분포를 보여준다. 원자력시설 주변 부지의 지표면 부근 포화도는 약 24-32% 이며, 토양은 다량의 모래와 자갈을 포함하고 있고, 수리전도도는 높은 편이었다.

나. 수직형동전기세정 장치 설계 및 제작

국내 방사성 오염토양은 많은 모래를 포함하여 투수계수

Table 1. Mineralogical composition and properties of the soil near nuclear facility

Soil properties	value
Saturation degree (pH)	
Surface	32.2%(6.9)
10cm depth	27.3%(6.9)
30cm depth	25.4%(6.1)
40cm depth	23.7%(5.9)
50cm depth	24.4%(5.9)
Porosity	0.40
Bulk density	1.57(g/cm^3)
Hydraulic conductivity	1.8x10^{-3} cm/sec

Table 2. Particle size percent of soil near nuclear facility

Soil Class	Sieve No.	Diameter	%	Cumulative %
Clay+Silt	200	0.075	5.55	5.55
Sand	100	0.15	4.87	10.42
	60	0.25	2.33	12.75
	40	0.425	9.41	22.16
	20	0.85	8.88	31.04
	10	2	21.22	52.26
Gravel	4	4.75	38.93	91.19
	2	10	8.81	100.00

가 높다. 따라서 국내 원자력시설 주변 오염 토양에 적합한 제염방법으로는 동전기방법과 토양세정방법의 장점을 살린 동전기세정 방법이 이 토양의 특성에 적합한 기술이라고 사료되므로 동전기세정장치를 제작하였다. 또한, 지금까지 동전기장치는 거의 수평형으로 제작되어 왔다. 그러나 수평형 동전기장치는 다음과 같은 문제점을 가진다. 즉, 토양셀 내부의 pH변화에 따라 제타포텐셜이 상승하여 양의 값으로 변하므로 전기삼투 흐름방향이 역류되어 양전극실 내의 용액이 방사능으로 오염된다. 또한, 세정제의 주입을 위해 펌프 사용 시 24시간 가동이 어렵고 토양투수능에 따라 펌프용량을 교체해야 한다. 그리고 토양셀 중앙부에 불포화층이 형성되어 제거효율이 감소하고 불균질하다. 이와 같은 문제점을 해결하기 위해 최근에는 수직형 동전기장치를 개발하고 있고 Jing-Yuan Wang 등(2007)은 음극에 축척된 오염물질을 쉽게 제거하기 위해 수직형 동전기장치를 개발하기 시작했다. 이 장치는 윗쪽에 음극을 설치하여 세정제가 아래에서 위쪽으로 흐르게 하여 오염물질이 토양 위쪽 표면에 모이게 하였다. 중금속으로 오염된 카올린으로부터 중금속을 제거하기 위해 upward 수직형 동전기장치를 사용하였고[15], 유기물을 제거하기 위해 upward 수직형 동전기장치를 사용하였다[16].

본 연구에서는 동전기세정장치를 수직형으로 제작했다. 수직형 동전기세정장치는 Fig. 1과 같이 세정제 저장조, 동전기토양셀, 토양폐액 저장조, 토양폐액 처리장치, 장치지지대, 정량펌프, power supply 등으로 구성되어 있다. 기존 동전기장치와의 차이점은 다음과 같다. 이 장치는 기존의 동전기장치와 토양세정장치를 혼합한 장치이며, 오염토양의 투수능에 따라 동전기토양셀 양전극실 내의 세정제 수위와 토양폐액 저장조 내 토양폐액 유입지점 사이의 높이 차(수두차)를 조절하여 동전기토양셀로 주입하는 세정제 주입량을 조절할 수 있다. 그러므로 본 장치는 토양폐액 저장조 높이를 조절함에 의해 토양셀 내의 수두 차를 변화시킴에 의해 다양한 투수능을 가진 방사성토양에 대해 단기간 내에 오염물질 제거효율을 높일 수 있다. 또한, 본 장치는 수직형으로 제작되었고 제염방향은 downward이며, 음극에서 발생한 수소가스를 제거하기 위해 음극여과철판을 15°로 기울여서 발생가스가 여과철판을 거쳐 동전기토양셀 뒤쪽 모서리 부분에 설치된 두 개의 수직 가스방출관을 통해 제거되도록 하였다. 그리고 본 장치는 24시간 가동 가능하고, 동전기토양셀에서 발생된 토양폐액은 토양폐액 저장조로 방출되며, 토양폐액 저장조 내의 토양폐액은 토양폐액 처리장치로 적정량씩 이송되어 토양폐액 처리장치에서 처리되어 재사용된다.

다. 제염실험

① 동전기제염을 위한 최적 세정제의 선정 실험

EDTA는 비교적 비싸며, 사염기산이므로 H_4Y 로 표시되며 4-6자리 배위자이다. EDTA는 6개 구역으로 금속에 접근할 수 있다[17]. 각 아세테이트 그룹과 두개의 질소는 동등결합에 필요한 자유전자쌍을 가지며 다양한 중금속에 대해 강한 킬레이트 능력을 보인다. 또한, citric acid는 비교적 값싸고 취급하기 쉽고 알칼린 토양금속(Ca, K, Mg)과 친화력이 작기 때문에, 토양세정을 위한 최적후보이다[18]. 착화물은 보통 하나 이상의 주요원자나 금속과 그들을 둘러싼 리간드

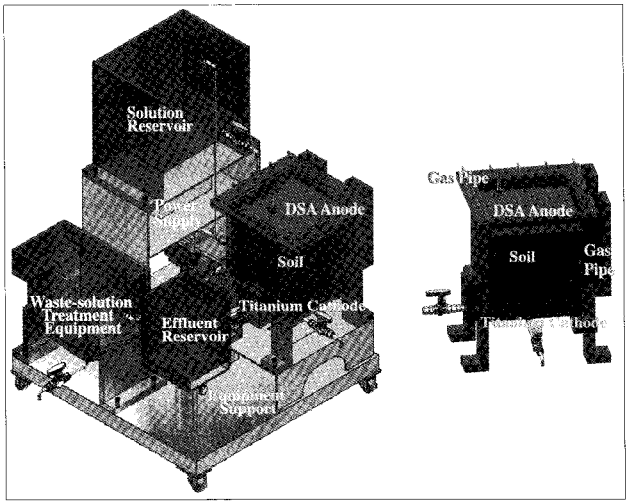

Fig. 1. Schematic diagram of vertical electrokinetic-flushing equipment

즉 많은 이온과 분자로 구성된다. 이 착화물을 킬레이트라고 부르며, 이것은 단일결합을 가진 금속-리간드보다 좀 더 안정하다[19]. 그러나 EDTA는 폐액처리 시 분해에 어려움이 있다. 질산과 염소는 토양에서 금속이온을 추출하기 위한 상당한 능력을 보인다. 그러나 이들의 사용은 토양의 물리, 화학, 그리고 생물학적 특성을 교란시킨다[20]. 옥살산은 생분해가능하고, 저렴하며, 안정한 금속 착화합물을 형성하기 때문에 토양으로부터 금속 추출제로 고려되고 있다 [21]. 더욱이 옥살산은 강한 유기산이기 때문에 수산화물을 용해할 수 있다[22]. 초산은 탄소원자 2개 산소원자 2개, 수소원자 4개가 결합하여 이루어진 알갱이이며, 생화학적으로 토양 내에서 분해되기 쉬워 제염 후 잔류 초산에 의한 토양 pH의 저감을 방지할 수 있기 때문에 동전기제염 시 활용되었다[23]. 동전기세정실험에 적합한 최적세정제를 선정하기 위해 먼저, 토양 친화성을 가지며 금속 제거효율이 큰 EDTA, 옥살산, 시트릭산 그리고 초산을 후보 세정제로 결정했다. 다음으로 수직형 동전기세정장치를 이용하여 위의 4개의 후보세정제로 동전기세정실험을 수행한 후 각 세정제에 의한 코발트와 세슘 제거효율을 비교하여 최적 세정제를 선정했다. 모의오염 토양으로부터 코발트와 세슘의 동전기세정공정을 수식화하면 아래식과 이온이동, 전기삼투, 수두 차에 의해 토양내의 오염물질이 음극으로 이동하여 제거된다.

$$j = [(k_o + k_m)\nabla\phi + k_h\nabla p]C - \frac{D}{\tau^2}\nabla C$$

여기서 j는 단위토양공극면적당 molar flux of species이고, k_o는 electroosmotic permeability 이며, k_m은 electromigration coefficient이고, k_h는 hydraulic permeability이며, p는 수두압력이고, C는 molar concentration이며, D는 diffusion coefficient이고, 그리고 τ는 non-dimensional tortuosity이다.

한편 여러 실험 시 사용하는 토양시료의 동질성을 유지시키기 위해 토양을 No. 200 sieve(75 ㎛)와 No. 10 sieve (2000 ㎛)로 체 분리하여 75~2000 ㎛ 크기의 토양을 사용하였다. 이 토양은 오염되지 않은 토양이므로 0.01 M의 Co^{2+}와 Cs^{+}을 인공적으로 오염시켰고 토양 오염농도는 각각 228 mg/kg과 521mg/kg이었다. 기존의 0.4 L수평형 동전기세정장치를 사용하여 0.01 M의 EDTA, 시트릭산, 옥살산, 초산으로 건조된 모의오염토양을 포화시킨 후 포화오염토양을 0.4 L 규모의 동전기토양셀에 채웠다. 동전기토양셀의 양쪽 위치한 음극과 양극에 power supply로 전압을 2 V/cm로 가한 후 15일 동안 동전기세정 제염실험을 수행하였다. 동전기토양셀 음전극실에서는 수소가 발생되며 pH가 증가하므로 주기적으로 HCl을 음전극실에 주입하여 음전극실의 pH가 6이하가 되도록 조정하였다. 또한 주기적으로 토양폐액 저장조로 유출되는 토양폐액 발생량을 측정하고 토양폐액 내의 코발트와 세슘 농도를 AA (AAnalyst 300)로 측정했다. 또한, 15일간의 실험이 끝난 후 동전기 제염실험에 의한 토양내의 코발트와 세슘 제거효율을 측정하기 위해, 토양셀 내의 토양을 6등분하고 3일 이상 건조시켰다. 6등분한 건조 토양시료 각각에 대해 건조토양 5 g과 질산 원액 약 10 mL을 섞어 150°C로 Hot plate에서 3일간 가열시킨 후 0.2 ㎛로 여과 및 희석하여 50 mL로 만들어 AA로 희석용액내의 코발트와 세슘의 농도를 측정했다.

② 수직형 동전기세정장치 최적제염조건 도출 실험

수직형 동전기세정장치의 최적제염조건을 도출하기 위해 Table 3에서 보여주는 것과 같이 새로 제작한 수직형 동전기세정장치를 사용하여 4번의 실험을 수행했다. 첫 번째로는 동전기제염 시의 제염효율을 분석하기 위해 양전극실의 세정제 수위와 토양폐액 저장조 폐액투입구의 높이를 일치시켰다. 앞의 실험결과로 선정된 0.01M의 최적 세정제를 사용하여 건조된 모의오염토양을 포화시킨 후 포화오염토양을 수직형 동전기세정장치의 8.3 L규모의 동전기토양셀에 채웠다. 동전기토양셀의 위와 아래에 위치한 음극과 양극에 power supply로 전압을 2 V/cm로 가한 후 20일 동안 동전기세정 제염실험을 수행하였다. 동전기토양셀 음전극실에서는 수소가 발생되며 pH가 증가하므로 주기적으로 HCl을 음전극실에 주입하여 음전극실의 pH가 8이하가 되도록 조정하였다. 또한 주기적으로 토양폐액 저장조로 유출되는 토양폐액 발생량을 측정하고 토양폐액 내의 코발트와 세슘 농도를 AA (AAnalyst 300)로 측정했다. 두 번째로 동전기세정실험 시 토양세정의 영향을 분석하기 위해 세정제 주입량을 동전기제염 시 보다 약 1.5 배 증가시켜 주었다. 세정제 증가로 인한 동전기제염 시 토양세정의 영향을 분석하기위해 실험기간 동안의 코발트와 세슘의 제거효율을 측정했다. 세 번째로는 전압구배를 증가시켰을 때의 제염특성을 분석하기 위

Table 3. Co^{2+} and Cs^{+} removal efficiency and effluent volume by vertical electrokinetic-flushing remediation under different treatment conditions

Reagent (Concentration)	Treatment time(days)	Contaminant	Removal efficiency	Effluent volume (mL/g)	Potential gradient (V/cm)
Acetic acid (0.01 M)	20	Co(%) Cs(%)	94.2 83.7	19,730mL (1.6)	2
Acetic acid (0.01 M)	20	Co(%) Cs(%)	98.3 88.8	29,596mL (2.4)	2
Acetic acid (0.01 M)	20	Co(%) Cs(%)	98.9 96.7	29,590mL (2.4)	4
Acetic acid (0.05 M)	20	Co(%) Cs(%)	99.7 93.6	29,359mL (2.3)	4

해 전압구배를 2배로 증가시킨 후 코발트와 세슘의 제거효율을 분석했다. 네 번째로는 전압구배 4 V/cm하에 세정제 농도를 변화시켰을 때의 제염특성을 분석하기 위해 세정제 농도를 0.01M로부터 0.05M로 증가시킨 후 코발트와 세슘의 제거효율을 분석했고 기타 실험 방법은 앞과 같다. 위의 실험을 통해 최단기간에 오염토양으로부터 코발트와 세슘의 제거효율을 증가시킬 수 있는 최적제염조건을 도출하고자 했다.

Ⅲ. 결과 및 고찰

가. 동전기제염을 위한 최적 세정제의 선정

전극실에 주입한 세정용액의 농도가 0.01 M이므로 초기 전극실에서의 pH는 3 부근이었다. 그러나 시간경과에 따라 전해반응 때문에 양극에서는 H^+가 생성되어 pH는 2.5 부근으로 떨어졌고, 음극에서는 약 1일 경과 후부터 OH^-가 생성되어 pH는 상승했다. 음극에서의 pH가 10이상으로상승하면 토양내부에 수산화물이 생성되어 세정용액의 이동속도가 저감함으로 염산을 음극 전극실에 주기적으로 첨가하여 음극칸의 pH를 6이하가 되게 조절했다. Fig. 2와 같이 15일간의 제염실험 후 토양셀 내의 pH는 2.5~3.5 이고 초산일 때 pH가 가장 낮았다. Fig. 3.은 동전기세정제염 15일 동안 각 세정제에 대한 코발트의 누적 제거효율을 보여준다. 세정제로 초산을 하였을 때 코발트의 평균 제거 효율은 93.2%였다. Fig. 4는 동전기제염 15일 경과후의 토양내의 잔류한 세슘의 농도를 양극에서의 정규거리에 대해 나타내었다. 세정제로 초산을 사용하였을 때 세슘의 평균 제거 효율은 82.7%였다. 그러므로 초산을 사용하였을 때 토양내의 Co^{2+}와 Cs^+ 제거 효율이 가장 높은 것으로 나타났다. 그이유의 하나로는 Fig. 2에서 보여주듯이 초산으로 동전기제염 시 토양셀 내의 pH가 가장 낮아지기 때문으로 사료된다.

이상과 같이 4가지의 세정제를 사용하여 동일한 조건으로 동전기제염 결과 초산을 사용하였을 때 토양으로부터 코발트와 세슘의 제거효율이 가장 높으므로 동전기제염을 위한 최적 세정제로 초산을 선정하고 이 세정제를 사용하여 수직형 동전기세정장치의 최적제염조건을 도출하기 위한 실험을 수행하였다.

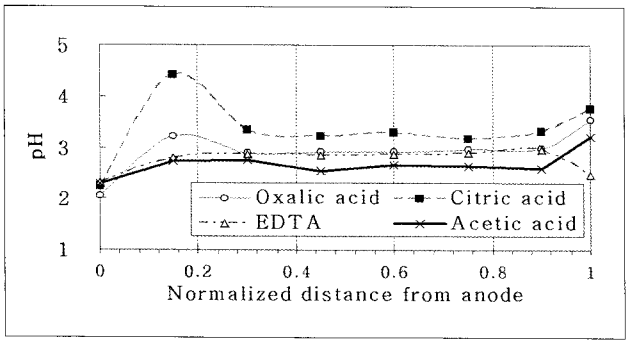

Fig. 2. pH variation in soil cell after completion of vertical electrokinetic remediation versus reagent.

나. 수직형 동전기세정장치 최적제염조건 도출

Table 3은 수직형 동전기세정장치를 사용하여 토양제염 시의 결과를 보여준다. 첫 번째 실험결과로 동전기방법에 의한 제염 시 코발트와 세슘의 제거효율은 각각 94.2%와 83.7%였고, 토양폐액 발생량은 단위 토양 당 1.6 mL/g으로 토양세정방법보다 제거효율은 매우 높고 토양폐액 발생량은 작았다. 두 번째 실험결과 동전기세정방법에 의한 세정제 주입량의 증가로 토양으로부터 코발트와 세슘의 제거효율은 각각 98.3%와 88.8%였다. 그러므로 동전기세정방법은 동전기방법

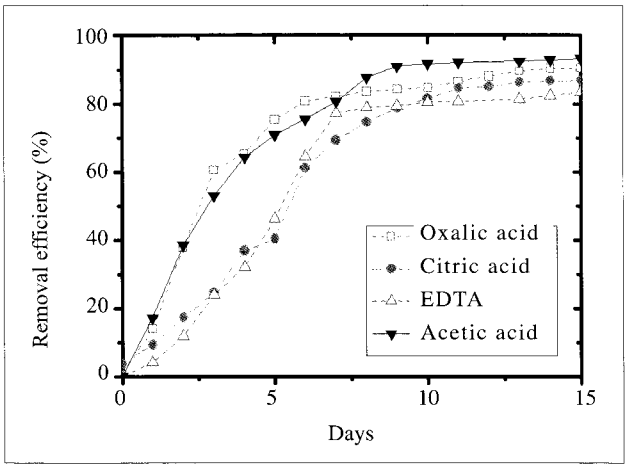

Fig. 3. Co^{2+} Remediation efficiency during vertical electrokinetic remediation versus reagent.

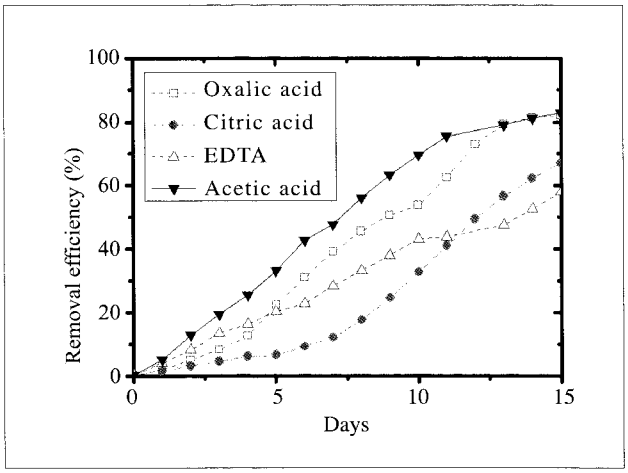

Fig. 4. Cs^+ Remediation efficiency during vertical electrokinetic remediation versus reagent.

보다 평균 약 4.6% 제거효율이 증가했고, 토양폐액 발생량도 2.4 ml/g 증가했다. 이것은 샘플 토양이 모래를 많이 함유하고 있기 때문에 동전기세정 시의 토양세정에 의해 토양으로부터 좀 더 많은 오염물질이 추출되었기 때문으로 사료된다.

세 번째 실험결과 동전기토양셀의 전압구배를 2배로 증가시켜 4 V/cm를 적용시켰을 때, 코발트와 세슘의 제거효율은 각각 98.9%와 96.7%로 평균 약 4.3% 제거효율이 증가했고 특히 세슘 제거효율의 증가율이 높았다. 그러므로 전압구배 증가 시 제거효율이 증가함을 알 수 있으나 스테인리스스틸과 티타늄 전극에 전압을 50V이상 가할 경우 음전극이 녹아버리므로 dimensionally stable anode (DSA)를 사용해야 하며 그러나 DSA 전극도 50V이상의 전압에서 서서히 녹기 때문에 4V/cm 이상의 전압구배를 주는 것은 어렵다고 사료된다.

네 번째로는 세정제 농도를 변화시켰을 때, 즉 세정제 농도를 0.01M로부터 0.05M로 증가시킨 후 제염실험 결과 코발트와 세슘의 제거효율은 각각 99.7%와 93.6%였다. 즉 코발트의 제거효율은 상승했지만 세슘의 제거효율은 감소하였다. 그러므로 세정제농도를 증가시켜도 제거효율의 변동은 거의 없는 것으로 나타났다. 그러므로 최적농도로는 초산 0.01M~0.05M로 사료된다. 위 실험결과 최적제염조건으로는 제염시간은 20일 동안 초산 0.01M~0.05M을 세정제로 사용하여 동전기 토양셀의 전압구배는 4 V/cm로 주며, 2.4 mL/g의 세정제를 주입하는 것이다. Fig. 5~Fig. 8은 전압구배는 4 V/cm 하에서 초산 농도변화 시의 토양폐액 발생량 및 코발트와 세슘의 일별 제거효율 그리고 일별 누적제거효율을 보여준다. 토양폐액 발생량은 초기에 많았으나 제염시간 경과와 함께 감소하였다. 코발트 제거효율은 초기 5일 이내에 제거효율이 높은 반면 5일이후의 제거효율은 감소함을 알 수 있었다. 한편, 세슘제거효율도 역시 초기 5일 이내에 제거효율이 높은 반면 5일이후의 제거효율은 감소함을 알 수 있었고, 코발트와 비교할 때 제거속도가 느리다는 것을 알 수 있었다. 또한

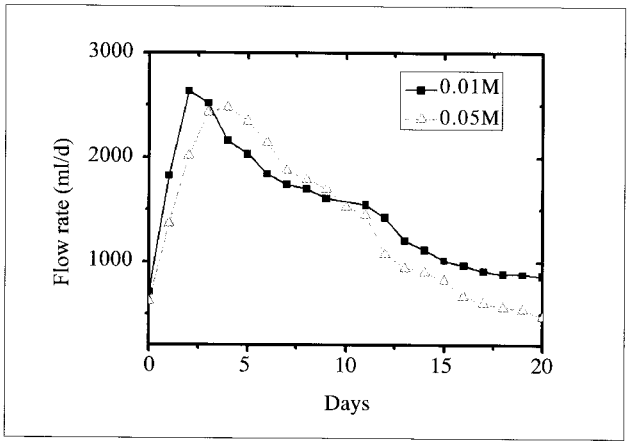

Fig. 5. The effluent flow rate at the cathode compartment during vertical electrokinetic-flushing remediation with acetic acid

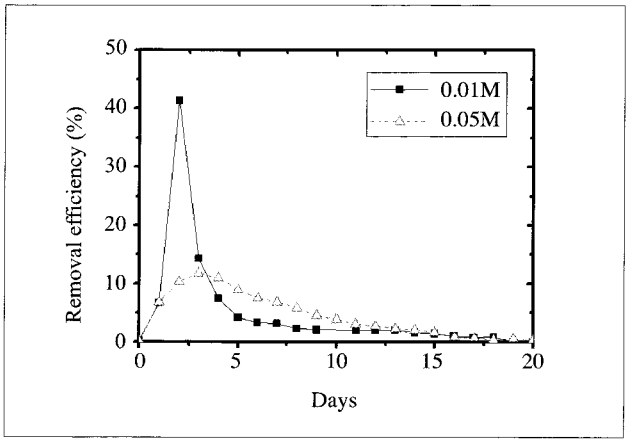

Fig. 7. Cs^+ removal efficiency during vertical electrokinetic-flushing remediation with acetic acid.

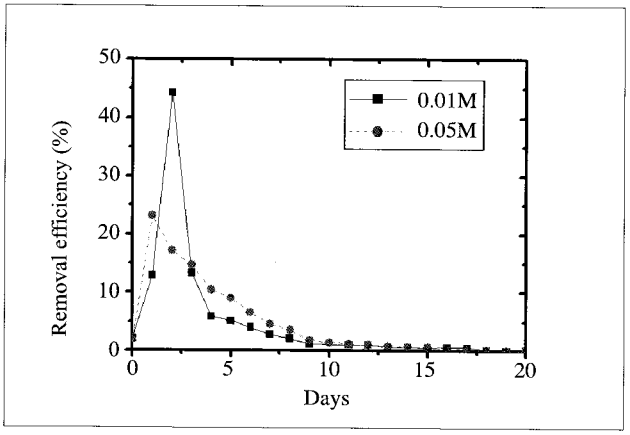

Fig. 6. Co^{2+} removal efficiency during vertical electrokinetic-flushing remediation with acetic acid.

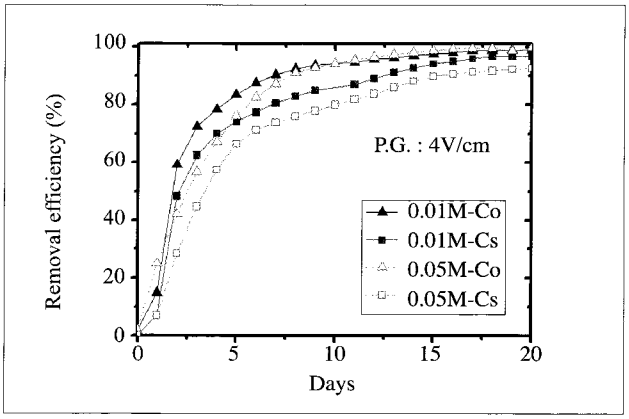

Fig. 8. Co^{2+} and Cs^+ cumulative removal efficiency versus concentration of reagent during vertical electrokinetic-flushing remediation with acetic acid.

일별 누적제거효율을 살펴보면 5일 경과후 코발트는 85%, 세슘은 75% 각각 제거되었다. 세정제농도를 증가시켰을 때, 제거효율 변화는 크지 않았고 코발트는 증가하나 세슘은 감소함을 알 수 있었다. 또한 높은 제염효율을 확보하기 위해서는 약 20일 간의 제염기간이 필요함을 알 수 있었다.

VI. 결 론

국내 원자력시설 주변 토양복원에 적합한 수직형 동전기세정장치 개발하고, 이장치를 이용한 실험을 통해 원자력시설 주변 토양을 복원하기 위한 최적제염조건들을 도출하기 위한 실험 결과는 다음과 같다. 즉, 초산을 사용하였을 때 토양으로부터 코발트와 세슘의 제거효율이 가장 높으므로 동전기 제염을 위한 최적 세정제로 초산을 선정하였고, 세정제 주입량의 증가로 토양으로부터 코발트와 세슘의 제거효율은 각각 98.3%와 88.8%로 평균 약 4.6% 제거효율이 증가했고 토양폐액 발생량도 동전기제염의 1.5배인 2.4 mL/g이었다. 동전기 토양셀의 전압구배를 2배로 증가시켜 4 V/cm를 적용시켰을 때, 코발트와 세슘의 제거효율은 각각 98.9%와 96.7%로 평균 약 4.3% 제거효율이 증가했고 특히 세슘 제거효율의 증가율이 높았다. 그리고 세정제 농도를 0.01 M로부터 0.05M로 증가시킨 후 제염실험 결과 코발트와 세슘의 제거효율은 각각 99.7%와 93.6%로 코발트의 제거효율은 상승했지만 세슘의 제거효율은 감소하였다. 그러므로 세정제농도를 증가시켜도 제거효율의 변동은 거의 없는 것으로 나타났다. 최적제염조건으로는 제염시간은 20일 동안 초산 0.01M~0.05M을 세정제로 사용하여 동전기 토양셀의 전압구배는 4 V/cm로 주며, 2.4 mL/g의 세정제를 주입하는 것이다.

감사의 글

본 연구는 정부가 지원하는 한국과학기술재단의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

[1] G. N. Kim, Y. H. Jung, J. J. Lee, J. K Moon, C. H. Jung, U. S. Chung, "Development of electrokinetic-flushing equipment for a remediation of soil contaminated with radionuclides, " Journal of the Korean Radioactive Waste Society, 6(1), pp. 1-9 (2008).

[2] K. Reddy, C. Y. Xu, S. Chinthamreddy, "Assessment of electrokinetic removal of heavy metals from soils by sequential extraction analysis," J. Hazard. Mater., B84, pp. 279-296 (2001).

[3] W. Z. Oh and G. N. Kim, "Studies on electrokinetic remediation of radioactively contaminated soil by using sulfuric acid," Journal of the Korean Radioactive Waste Society, 2(2), pp. 145-153 (2004)

[4] S. Pamukcu and J.K. Wittle, "Electrokinetic removal of selected heavy metals from soil," Environ. Prog., 11(3), pp. 241-250 (1992).

[5] K. Reddy and S. Chinthamreddy, "Sequentially enhanced electrokinetic remediation of heavy metals in low buffering clayey soils," J. Geotech. Geoenviron. Eng., March, pp. 263-277 (2003).

[6] F. Braud, S. Tellier and M. Astruc, "Modeling of decontamination rate in an electrokinetic soil processing," International Journal of Environmental Analytical Chemistry., 68, pp. 105-121 (1998).

[7] S.O. Kim, S. H. Moon, K.W. Kim, "Removal of heavy metals from soils using enhanced electrokinetic soil processing," Water, Air, and Soil Pollution., 125, pp. 259-272 (2001).

[8] M.M. Page, and C.L. Page, "Electroremediation of contaminated soils," Journal of Environmental Engineering., ASCE, 128, pp. 208-219 (2002).

[9] C. Chaiyaraksa and N. Sriwiriyanuphap, "Bach washng of cadmium, from soil and sludge by mixture of $Na_2S_2O_5$ and Na_2 EDTA," Chemosphere., 546, pp. 129-135 (2004).

[10] C. G. Rampley and K. L. Ogden, "Preliminary studies for removal of lead from surrogate and real soils using a water soluble chelator, adsorption and batch extractiom," Environ. Sci. Technol., 32(7), pp. 987-993 (1988).

[11] B. Sun, F. J. Zhao, E. Lombi, S. P. McGrath, "Leaching of heavy metals from contaminated soil using EDTA," Environ Pollut., 113, pp. 111-120(2001).

[12] R. Abumaizar and L.L. Khan, "Laboratory investigation of heavy metal removal by soil washing," J. Air Waste Manage. Assoc., 46, pp.

765-768 (1996).

[13] B. Kornilovich, N. Mishchuk, K. Abbruzzese, G. Pshinko, R. Klishchenko, "Enhanced eletrokinetic remediation of metals-contaminated clay," Colloids and Surfaces A:Physicochem. Eng. Aspects., 265, pp. 114-123 (2005).

[14] A. Giannis, E. Gidarakos, A. Skouta, "Application of sodium dodecyl sulfate and humic acid as surfactants on electrokinetic remediation of cadmium-contaminated soil," Desalination., 211, pp. 249-260 (2007).

[15] J. Y. Wang, X. J. Huang, J. C. M. Kao, O. Stabnikova, " Removal of hreavy metals from kaolin using an upward electrokinetic soil remedial(USER) technology," Journal of Hazardous Materials, B136, pp. 532-541 (2006).

[16] J. Y. Wang, X. J. Huang, J. C. M. Kao, O. Stabnikova, "Simultaneous removal of origanic contaminants and heavy metals from kaolin using an upward electrokinetic soil remediation process," Journal of Hazardous Materials, B144, pp. 292-299 (2007).

[17] A Barona, I. Aranguiz, A. Elias, "Metal associations in soils before and after EDTA extractive decontamination: implications for the effectiveness of further clean-up procedures," Environ. Pollut., 113, pp. 75-85 (2001).

[18] R. Bassi, S. O. Prasher, B.K. Simpson, "Extraction of metals from a contaminated sandy soil using citric acid," Environ. Prog., 19(4), pp. 275-282 (2000).

[19] J. C. Chao, A. Hong, R. W. Peters, Proceedings of the Conference on Hazardous Wastes Research, pp. 142, UT, USA (1998).

[20] S. Tampouris, N. Papassiopi, I. Paspaliaris, "Removal of contaminant metals from fine grained soils, using agglomeration, chloride solution and pile leaching techniques," J. Hazard. Mater., B84, pp. 297-319 (2001).

[21] H.A. Elliot and N.L. Shastri, Water Air Soil Pollut, pp. 335, (1999)

[22] W. Stumm, Chemistry of the Solid-Water Interface, pp. 165, Wiley-Interscience, New York (1992).

[23] G. N. Kim, W. Z. Oh, H. J. Won, W. K. Choi, "Removal of cesium and cobalt from soil around TRIGA reactor using electrokinetic method," J. Ind. Eng. Chem., 9(3), pp. 306-313 (2003).