

최종보고서

과제번호 : 23-01-03-03-22

수 질

**서울시 발생 건축폐기물 재자원화 및 자원회수
기술개발**

2024. 1. 17.

김한승



환경부지정
서울녹색환경지원센터
Seoul Green Environment Center

제 출 문

서울녹색환경지원센터장 귀하

본 보고서를 “서울시 발생 건축폐기물 재자원
화 및 자원회수 기술 개발”에 관한 연구보고서
로 제출합니다.

연구기관명 : 건국대학교 산학협력단

연구책임자 : 김 한 승 교수(건국대 사회환경공학부)

연 구 원 : 수완나카워 마유리, 진사우, 한상우, 이정하

공동연구기관명 : HL Ecotech

요 약 문

I. 연구개요

최근 재건축 및 재개발의 활성화로 인한 대규모 택지개발, 신도시 건설, 사회기반시설 확충 등의 증가로 건설폐기물량이 급증. 건설/산업부산폐기물은 재활용 이외에는 마땅한 처리방법이 없이 대부분 매립되고 있어, 큰 환경부담요인으로 작용. 2025년부터 직매립금지 시행에 따라 이러한 건설/산업부산폐기물을 매립이 아닌 획기적인 대안을 통해 처리하는 것이 시급환경과제로 자리매김. 또한, 건설/산업부산폐기물에는 고부가가치의 희유/희토류 자원이 포함되어 있어, 이를 회수하여 자원화하는 기술개발과 이에 따른 새로운 산업 및 시장의 확대에 대한 관심이 증가하고 있음. 이와같이 막대한 규모로 발생하는 무기성 건설/산업부산폐기물의 유용성분을 선택적으로 자원화/소재화할 수 있다면, 가장 시급한 환경현안문제에 해결과 동시에 새로운 환경산업 및 시장의 창출과 이에 따른 고부가가치 창출이 가능한 신기술의 확보가 가능.

II. 연구의 필요성 및 목적

[연구목적]

건설폐기물에 포함된 무기물질의 재자원화를 위하여 혼합건설폐기물에 포함된 불순물질을 선택적/효과적으로 제거하기 위한 건설폐기물 시멘트 개질기법을 개발하고자 함. 자원소재화한 환경정화용 복합 세라믹 막을 제작하고 이를 통해 건설폐기물의 재자원화/소재화 기법을 제시하며, 건설폐기물에 포함된 희토류/희유금속을 효율적/경제적으로 회수하기 위하여 건설폐기물 맞춤형 연속추출법을 개발하고자 함.

[연구필요성]

서울시에는 80%이상의 건축물이 재개발·재건축에 해당되고, 도시재생사업 과정에서 막대한 양의 건설폐기물(1,460ton/year)이 발생하고 있는 실정.

2025년 인천 수도권 매립지가 종료됨에 따라, 서울시에서 발생하는 건설폐기물의 매립 처리율을 현저하게 낮추어야 하며, 무기자원들이 다량 함유된 건설폐기물을 재자원화/자원회수기술을 개발하고자 함.

재자원화 소재 개발을 위해 시멘트의 정제, 물리·화학적 특성과 구조 및 표면의 변화 등 다양한 개질기법을 필요로 함.

시멘트에 포함되어 있는 규산화물(SiO_2), 알루미늄산화물(Al_2O_3), 철산화물(Fe_2O_3)을 이용하여 세라믹 환경소재를 제작하고, 정제된 석회(CaO)를 이용하여 희토류/희유금속을 추출·회수함으로써, Zero-waste 공정을 구현하고자 함.

Ⅲ. 연구의 내용 및 범위

(1) Si-Al(Ceramic)기반 다공성 물질 소재화를 위한 시멘트 개질기법 개발

본 연구에서는 다양한 오염물질을 선택적/효과적으로 제거하기 위하여 건설폐기물의 시멘트를 환경정화용 세라믹 소재로 재자원화하는 무기물질 개질 기술을 개발

(2) Si-Al(Ceramic)기반 환경정화용 복합광촉매흡착제 및 세라믹 막 제조기술 개발

본 연구에서는 건설폐기물의 재자원화한 세라믹 소재를 기반으로 난분해성 물질을 고도산화하고 흡착·제거할 수 있는 복합광촉매흡착제와 다기능 세라믹 막을 제작하여 건설폐기물의 자원화를 통한 고부가가치 제품의 생산기법을 개발. 막대한 양으로 배출되는 건축폐기물의 재자원화는 기존의 단순한 재활용과는 다른 폐기물을 산업재료로 변환하여 제품을 제작하는 신개념의 기술로 고부가가치의 세라믹 기반 다공성소재 생산을 통해 경제성 확보.

(3) 건설폐기물로부터 유가자원 회수기법 개발

본 연구에서는 건설폐기물의 재자원화 단위공정에서 희토류/희유금속의 유가자원을 회수하여 배출폐기물을 최소화하는 Zero-waste 공정을 제시하는 것이 목표임.

Ⅳ. 연구결과

건설폐기물에 포함되어 있는 폐콘크리트와 폐아스콘을 이용하여 성분 분석한 결과, 폐콘크리트(SiO_2 33.625%, Al_2O_3 21.649%), 폐아스콘(SiO_2 28.245%, Al_2O_3 23.873%) 함유되어 있었으며, 규산화물과 알루미늄 산화물 함유량이 풍부한 폐콘크리트를 기반으로 연구를 진행함. 알루미늄 함유량, 소성온도 및 소성시간을 통해 제작된 다양한 세라믹 분리막을 성능시험한 결과, 4:1, 1050°C, 8hr 조건에서 제작된 세라믹 분리막은

66kDa BSA물질을 약 99.98% 제거하였음. Pore blocking 현상을 확인하기 위해 MB 물질을 이용하였지만, Flux 변화는 없었으며, MB 물질이 제거된 것으로 보아, 여과 및 흡착되었음을 확인. 산화아연(Zinc oxide, ZnO)와 화원된 그래핀 산화물(Reduced graphene oxide, rGO)를 통해 촉매반응을 확인하였으며, Bandgap energy 차이로 인한 단일 ZnO를 사용한 촉매반응 보다 rGO와 함께 이용한 촉매반응이 보다 제거율이 높은 것을 확인함. 폐콘크리트를 이용한 유가자원회수기술에서 새로운 연속추출법에 의해 REE의 추출 효율이 크게 향상되고 69.63%의 도달했으며, 이는 Tessier 및 BCR 방법 보다 약 3.76배 및 2.54배 높게 나타남. 새로운 연속추출법에 의해 약하게 결합된 REE는 시트르산에 의해 폐콘크리트로부터 효과적으로 추출되었음. 주요 성분 CaO, SiO₂, Fe₂O₃ 및 Al₂O₃ 함량은 순차적 추출 단계에서 염기성 용액 및 열 소화에 의해 용해되었으며, 관련 REE는 단계적으로 효과적으로 방출되었음.

V. 연구결과의 활용계획

건설 및 산업부산폐기물과 같은 무기산업폐기물의 자원소재화를 통한 산업부산물의 부하량을 감소시키고, 기존의 물리·화학적 처리의 높은 비용, 불안정한 처리효율, 부산물 발생, 다량의 화학약품투여 등의 문제점을 해결하고 현장에서의 낮은 처리효율, 운영의 어려움 등의 단점을 보완하는 친환경 신기술을 개발.

고효율·저비용의 재자원화된 소재의 사용으로 고부가가치 제품의 생산이 가능하고, 이를 통한 새로운 환경기술시장 창출 및 확대에 따른 파급효과로 직·간접적 경제적 이익을 취함. 또한, 신산업 창출을 바탕으로 유사·동종 업계를 활성화하여 경제성장의 원동력을 제공하고, 궁극적으로 삶의 질을 향상시킴.

본 문 목 차

제 1장 서론

1.1 연구필요성

제 2장 본론

2.1 연구개발 목표 및 내용

2.1.1 연구개발 목표13

2.1.2 연구개발 내용.....13

2.1.3 연구개발에 필요한 기술 및 기법 내용.....15

2.2 연구개발 결과 및 자체평가

2.2.1 연구개발 결과.....16

2.2.2 연구개발 자체평가32

2.3 기대성과 및 활용방안

2.3.1 연구개발 기대성과.....33

2.3.2 연구개발 활용방안.....34

그 림 목 차

Figure.1 폐콘크리트 원소성분분석 결과(SEM mapping)

Figure.2 철산화물 제거된 폐콘크리트(왼쪽), 표면적을 극대화한 폐콘크리트(오른쪽) 표면분석 결과

Figure.3 2:1 알루미늄 첨가된 폐콘크리트 원소성분분석 결과

Figure.4 3:1 알루미늄 첨가된 폐콘크리트 원소성분분석 결과

Figure.5 4:1 알루미늄 첨가된 폐콘크리트 원소성분분석 결과

Figure.6 2:1 세라믹 분리막의 서로 다른 소성온도에 따른 투과율 변화

Figure.7 2:1 세라믹 분리막의 서로 다른 소성시간에 따른 투과율 변화

Figure.8 3:1 세라믹 분리막의 서로 다른 소성온도에 따른 투과율 변화

Figure.9 3:1 세라믹 분리막의 서로 다른 소성시간에 따른 투과율 변화

Figure.10 4:1 세라믹 분리막의 서로 다른 소성온도에 따른 투과율 변화

Figure.11 4:1 세라믹 분리막의 서로 다른 소성시간에 따른 투과율 변화

Figure.12 서로 다른 알루미늄 비율 및 최저, 최고 소성온도 조건에서의 세라믹 분리막 표면분석 결과(A: 850°C, 2:1, B: 1050°C, 2:1, C: 850°C, 3:1, D: 1050°C, 3:1, E: 850°C, 4:1, F: 1050°C, 4:1)

Figure.13 서로 다른 알루미늄 비율 및 소성시간 조건에서의 세라믹 분리막 표면분석 결과(A: 8hr, 2:1, B: 16hr, 2:1, C: 8hr, 3:1, D: 16hr, 3:1, E: 8hr, 4:1, F: 16hr, 4:1)

Figure.14 서로 다른 조건에 따른 증류수 및 BSA stock solution의 세라믹 분리막 투과율 변화

Figure.15 세라믹 멤브레인 투과 전후 BSA 농도변화

Figure.16 시간에 따른 세라믹 분리막 내에 흡착된 MB 농도의 변화

Figure.17 ZnO를 첨가한 세라믹 분리막 표면(왼쪽), ZnO/rGO를 첨가한 세라믹 분리막 표면(오른쪽)

Figure.18 각 성분에 따른 MB 흡착율 및 UV를 이용한 MB 제거율

Figure.19 기존의 연속 추출법 대비 새로운 연속 추출법의 용출정도 분석(ICP/MS)

표 목 차

Table.1 무기소재별 기공크기 및 투과율 차이

Table.2 전처리 전 건설 및 산업부산폐기물(A: 폐콘크리트, B: 폐아스콘)에 포함된 성분

Table.3 서로 다른 비율로 첨가된 폐콘크리트의 원소성분분석 결과

Table.4 서로 다른 비율로 첨가된 세라믹 분리막의 투과율 감소율

Table.5 성능분석을 위한 각 조건 설정

Table.6 각 조건 별 증류수 대비 BSA 투과율 감소 분석

Table.7 각 조건별 MB 흡착율, 제거율 분석 및 TOC분석을 통한 이산화탄소 변화율 분석

Table.8 본 연구에서의 건설 및 산업부산폐기물 희유금속 함량

Table.9 서로 다른 산·염기 용액을 통한 잔여 성분 비율 분석 (XRF)

제 1 장 서 론

1.1 연구필요성

최근 재건축 및 재개발의 활성화, 대규모 택지개발, 신도시 건설, 사회기반시설 확충 등의 증가로 건설폐기물이 급증하고 있음. 이러한 건설폐기물은 주변 환경피해, 매립장 수명단축, 국가자원 낭비 등의 문제를 초래함.

건설폐기물은 구조물의 설치 또는 해체에 따라 발생하는 폐콘크리트, 폐아스콘, 유리, 목재, 생활폐기물 등 각종 폐기물들이 혼합되어 배출되고 있으며, 이는 2020년 기준 연간 2,000만 톤 이상의 건설폐기물이 국내에서 발생·배출되고 있음. 대부분의 처리 방식은 재활용을 채택하고 있으나, 처리하지 못한 건설폐기물은 대부분 매립되고 있어 큰 환경부담요인이 되고 있음.

2025년부터 직매립금지 시행에 따라 이러한 건설 및 산업부산폐기물 또한 매립에 의존하는 처리방법에서 벗어나 획기적인 대안을 마련해야 하는 실정임. 통계자료에 따르면 건설폐기물에는 약 15%의 석회석이 포함되어 있으며, 석회석 속에는 약 63%의 석회(CaO), 23%의 규소산화물(SiO , SiO_2), 6%의 알루미늄산화물(Al_2O_3), 그 외의 철산화물(FeO , Fe_2O_3)이 포함되어 있음.

다른 산업부산폐기물을 고형화하는 방안으로 콘크리트와 혼합하여 골재를 제조하기도 함. 대표적으로 석탄회를 주로 사용하며, 시멘트를 석탄회로 대체할 경우 중금속 농도가 뚜렷하게 낮아지는 것으로 알려져 있음. 또한, 보다 미세한 입자로 구성된 석탄회를 사용하면 콘크리트의 강도가 높아지는 것으로 알려져 있음. 하지만, 이 또한 매립이 진행되며, 실질적으로 환경부담을 피할 수 없음.

한편, 산업부산폐기물에는 고부가가치의 희유금속자원이 포함되어 있어 이를 회수하여 자원화하는 기술개발과 이에 따른 새로운 산업 및 시장의 확대에 대한 관심이 증대되고 있음. 이러한 희유금속자원의 가치는 첨단산업의 발전과 더불어 점차 높아져 가고 있으며, 국내 주요 산업계는 희유금속 자원 등 원자재 조달에 어려움을 겪고 있음.

이와 같이 막대한 규모로 발생하는 무기성 건설 및 산업부산폐기물의 유용성분을 선택적으로 자원·소재화할 수 있다면 가장 시급한 환경현안문제의 해결과 동시에 새로운 환경산업 및 시장의 창출과 이에 따른 고부가가치 창출이 가능한신기술의 확보가 가능함.

제 2 장 본 론

2.1 연구개발 목표 및 내용

2.1.1 연구개발 목표

건설 및 산업부산폐기물을 정제·개질하고 이를 환경정화소재 제품을 제작하고 고부가가치 희유금속을 회수·고도화하는 공정을 개발함으로써, 무기폐기물의 재자원·소재화 및 Zero-waste 회수기법을 개발하여 미래형 친환경산업기술을 제시.

- ① 건설 및 산업부산폐기물에 포함된 무기물질의 재자원화를 위한 분리·선별·정제 및 개질기술의 개발: 맞춤형 환경정화소재 Si-Al(Ceramic) 소재 변환 기술개발.
- ② 재생 Si-Al 소재를 기반으로 난분해성 오염물질을 고도산화하고 흡착·제거할 수 있는 다공성 복합광촉매흡착제 및 다기능 Hybrid 세라믹 막 제작기술 개발.
- ③ 건설 및 산업부산폐기물의 재자원화 공정에서 고가의 유가자원(희유금속)을 회수하는 기법 및 공정의 개발과 이를 통한 Zero-waste 공정을 제시.
- ④ 전해추출(Electrowinning, EW)와 전기투석(Electrodialysis, ED)기법을 활용한 회수 자원의 고순도화 공정 및 회수된 무기자원 기반 광전전환 에너지 소자 개발.

2.1.2 연구개발 내용

- 환경정화용 소재 Si-Al 기반의 친환경소재 정제 및 다공성 물질로 변환
 - 물리적 전처리(분쇄 및 선별) 공정을 통한 물리적 균질성 및 이화학적 반응성 향상
 - 체거름(Sieving)을 통해 입자 크기에 따른 1차 선별 진행
 - 불규칙한 입자 크기의 건설 및 산업부산폐기물을 Fine particle로 전환
 - 물리적(자력)/화학적(산·염기) 공정을 통한 미량 불순물 제거
 - 세라믹 막 제조에 불필요한 Fe_2O_3 를 물리적 처리를 통해 제거
 - 물리적 처리를 통해 제거되지 않은 미량 불순물을 화학적 처리를 통해 제거
 - 열처리(Pyrolysis, hydrothermal synthesis process) 공정을 통한 다공성 극대화
 - 금속산화물(ZnO , TiO_2 , NiO etc)과의 합성을 통해, 광촉매 역할을 부여
 - 각 열적 처리 합성 공정의 결과물 기반의 다양한 인자(시간, 온도)에 대한 최적화
 - 다양한 첨가제(Al_2O_3 , ZrO_2)를 통한 다공성 향상 및 기계적 강도 향상
 - 실 공정에 적용하기 위한 필요조건인 기계적 강도를 첨가제를 통해 향상
 - 세라믹 막의 균질성의 중요한 특성(Si/Al ratio)을 향상시키기 위해 Sol-gel 기법 적용
 - 첨가제에 따른 다공성 향상 및 기계적 강도를 Lab Scale에서 Module을 통한 최적화

- 다기능 Hybrid 세라믹 막 제작 기법 및 표면 개질기술 개발
 - 촉매 입자(metal oxide) 및 부가적인 화학적 작용기 활성화를 통한 intra/inter particle 표면처리
 - 다양한 촉매 입자(ZnO_2 , TiO_2 , NiO_2 etc)를 세라믹 막 표면 위에 첨가하는 기술개발
 - Scanning Electron Microscope(SEM)을 통해 세라믹 막 표면에서의 촉매 입자의 균질화 확인
 - Fourier-Transform Infrared spectroscopy(FT-IR)를 통해 화학적 작용기의 유무 확인
 - 광촉매 반응을 통한 재사용 가능한 세라믹 막 제작
 - 다양한 유기오염물질(organic dye, humic acid etc)을 module을 통해 제거 효율 파악
 - Bio-fouling 현상을 UV를 통한 광촉매 반응을 통해 제거 및 재사용 가능성 파악
 - 공극 내 존재하는 유기오염물질을 제거하기 위해 다양한 인자(Acid/Base, 농도, 접촉 시간)에 따른 최적화 진행
- 건설 및 산업부산폐기물 전처리 공정 기반의 희유금속 회수기술 개발
 - 제거된 미량 불순물에 존재하는 희유금속 확인
 - 다양한 산·염기 종류에 따른 추출정도 확인
 - 다양한 산·염기 농도에 따른 추출정도 확인
 - Microwave digestion을 이용한 추가적인 처리(열, 압력)의 효율 확인
 - 단계별 추출효율 분류 및 최적화
 - 복합 산·염기를 이용한 단계별 추출정도 확인
 - X-ray 형광분광기(XRF)를 통한, 잔여 성분을 확인
 - 유도결합플라즈마(ICP)를 통한, 용출된 금속이온의 정성·정량 분석 진행

2.1.3 연구개발에 필요한 기술 및 기법

- 환경정화용 소재 Si-Al 기반의 친환경소재 정제 및 다공성 물질로 변환
 - 무기소재 별 세라믹 분리막 특성
 - 세라믹 분리막은 무기소재(Alumina, Titania, Silica, Carvide, Silicaon nitride, Zirconia, Zeolite 등)을 이용하여 제조함.
 - 무기소재는 내열성, 내약품성, 내유기 용매성 등이 우수하고 기계적 강도가 강하여 주로 고분자 분리막에 비해 고온의 가혹한 조건에서도 사용될 수 있으며, 다양한 하폐수 처리에 적용됨.
 - 비대칭 세라믹 구조층은 대부분 정밀여과(MF)부터 한외여과(UF) 범위의 공극을 형

성하고, 특정 조건에 따라 세라믹 분리막 기공의 크기를 조절할 수 있음.

[Table.1] 무기소재별 기공크기 및 투과율 차이

Membrane layer	Pore size	Permeability (1/hr m ² bar)
Alumina	0.1 - 0.2 μm	1500-2000
	0.5 - 0.8 μm	4500-7500
	1.4 - 2.0 μm	11000-15000
	5.0 μm	20000-23000
Zirconia	20 - 50 nm	300-900
	80 - 100 nm	1300-1800
Titania	200 - 1000 dalton	20-30
	3000 - 5000 dalton	45-60

- Sol-gel 기법을 통한 세라믹 분리막 표면의 금속첨가 기술
 - 세라믹 분리막 표면에 미세 기공층을 형성하기 위해 낮은 소성온도에서 소성시키며 지지체를 균일하게 분포시킬 수 있는 Sol-gel 기법을 주로 사용함.
 - 지지체의 균일한 분포는 소성 온도의 변화에 따라 분리막의 결정 구조 및 직경의 크기를 결정하는 영향인자로서 작용함.
- 열합성법을 통한 세라믹 분리막 제작기법
 - 1,400~1,700℃ 고온조건에서 소성되는 세라믹은 우수한 강도를 지니고 있으나, 결정립성장(Grain growth)으로 인하여 세라믹 기공을 형성하기 어려움.
 - 이를 해결하고자 900~1,100℃ 온도조건에서 소성시켜 성형에 용이한 세라믹 소성체를 제작하는 연구가 많이 진행됨.
 - 또한, Si/Al 비율은 소성체를 만드는 과정에서 결정구조를 결정하는 큰 요소로 작용하여 세라믹 분리막의 기공의 차이가 발생함.
 - 따라서, 세라믹 소성체 제작의 조건으로 Alumina함량, 소성온도, 소성시간에 따라 제작되는 세라믹 분리막의 특성을 분석하고자 함.
- 기존 연속추출법을 통한 새로운 연속추출법 개발
 - 기존 연속추출법의 산업폐기물에 대한 적용성 확인
 - 금속 산화물의 특성을 고려한 적절한 반응 조건 설계
 - 새로운 연속추출법을 통한 유가자원 추출 효율 향상
- 산업기 공정을 통해 용매의 종류, 농도, 접촉시간에 따른 희유금속 회수
 - 화학적 방법을 통해 대량의 금속 산화물을 단계별로 제거
 - 제거와 동시에 경제적 가치가 있는 희유금속 회수

- Microwave digestion을 이용한 개발된 회유금속 회수기술은 기존 추출방법보다 회수 효율 향상

2.2 연구개발 결과 및 자체평가

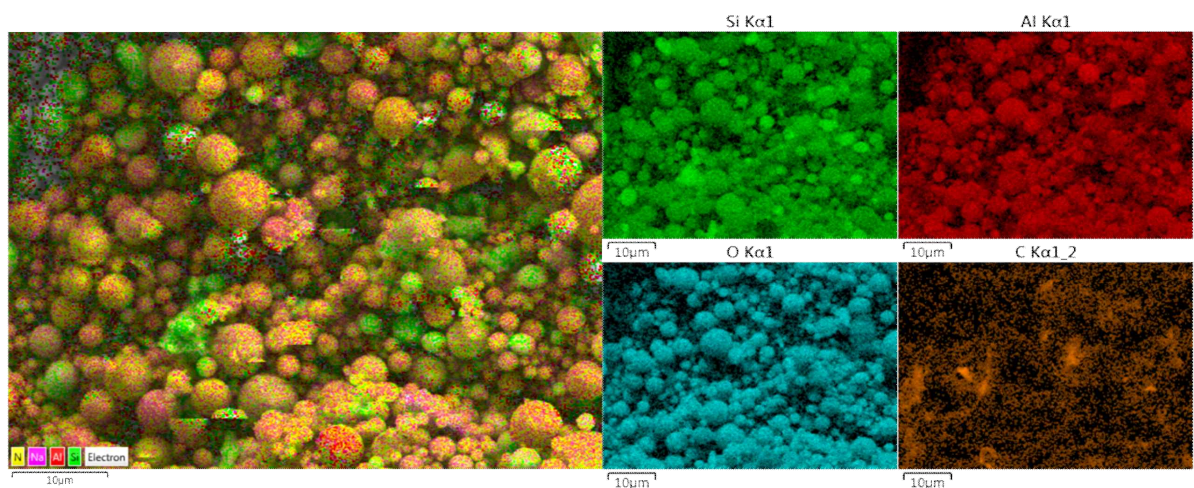
2.2.1 연구개발 결과

- 환경정화용 소재 Si-Al 기반의 친환경소재 정제 및 다공성 물질로 변환
 - 1차 물리적 처리가 진행된 건설 및 산업부산폐기물의 성분을 분석한 결과, 규소산화물과 알루미늄산화물이 80%이상을 차지하고 있는 것을 확인함.
 - 그 이외의 물질로는 철 산화물이 가장 많이 존재하였으며, 다른 금속산화물들이 다양하게 분포한 것으로 보아, 회유금속의 회수 가능성을 파악함.

[Table.2] 전처리 전 건설 및 산업부산폐기물(A: 폐콘크리트, B: 폐아스콘)에 포함된 성분

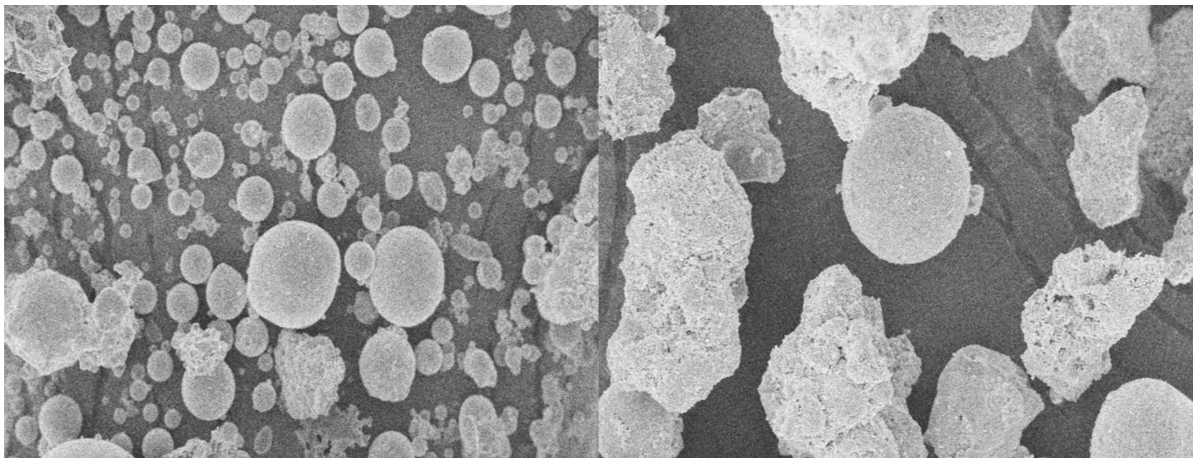
성분	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	TiO ₂	MgO	CuO	Others
폐 콘크리트(%)	33.625	21.649	28.938	8.713	1.910	1.377	1.215	2.573
폐아스콘(%)	28.245	23.873	9.334	24.131	1.336	1.684	1.524	9.873

- Table 2에서는 폐콘크리트에는 폐아스콘에 비해 규소산화물과 알루미늄산화물의 함유량이 풍부한 것을 통해 세라믹 환경정화소재로 변환 가능.



[Figure.1] 폐콘크리트 원소성분분석 결과(SEM mapping)

- Figure 1를 통해 전처리 전 폐콘크리트 표면에는 약 14.92%의 실리카 성분이 존재하고, 8.83%의 알루미늄 성분이 존재하는 것을 확인하였음.
- 정제되지 않은 폐콘크리트 성분 중 불필요한 성분을 제거하기 위하여 물리적 화학적 전처리를 진행하였으며, 화학적으로 안정한 철산화물은 물리적으로 처리하는 방법을 선택, 화학적으로 불안정한 미량의 중금속 및 잔여 유기물질을 화학적으로 처리하는 방법을 선택함.
- 철산화물을 제거하기 위해 네오디뮴 자석을 이용하였으며, 미량의 중금속 및 유기물을 제거하기 위해 5M 아세트산을 이용하였음. 또한, NaOH beads를 이용한 열적처리를 통해 비표면적을 극대화 하였으며, 이를 Figure 2를 통해 알 수 있음

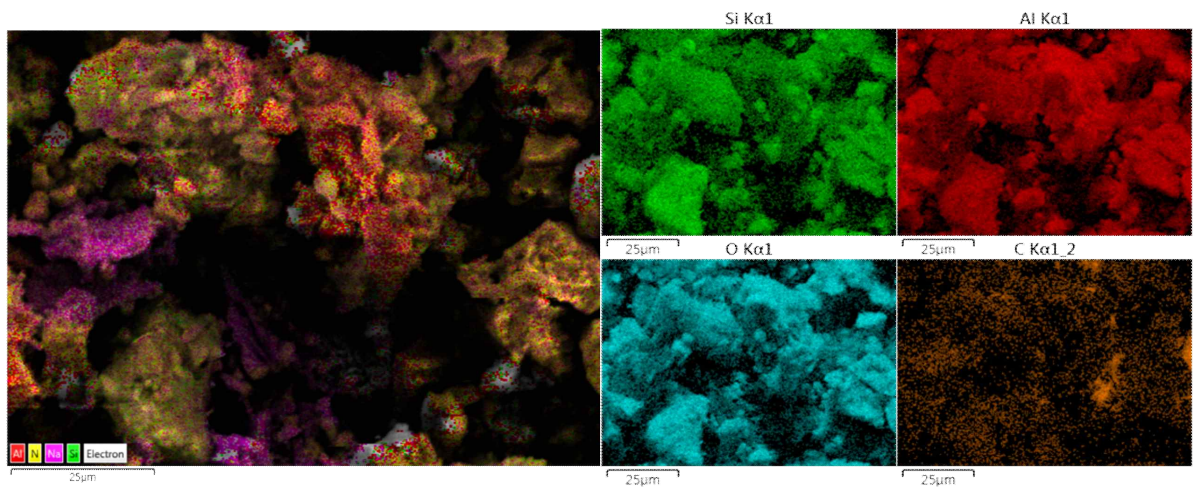


[Figure.2] 철산화물 제거된 폐콘크리트(왼쪽), 표면적을 극대화한 폐콘크리트(오른쪽) 표면분석 결과

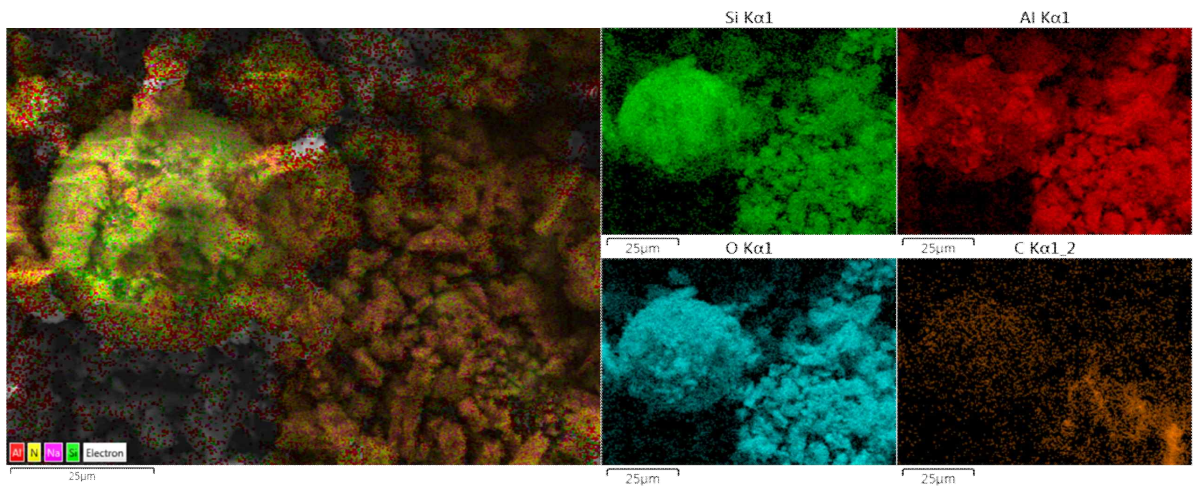
- 세라믹 환경정화소재로서의 전환을 위한 추가적인 알루미늄 첨가이 필요한 것으로 판단하였으며, sol-gel method를 이용한 알루미늄 첨가 진행.
- 첨가한 Aluminium nitrate nonahydrate powder 무게와 표면활성화된 폐콘크리트 powder 무게 비를 2:1, 3:1, 4:1로 하여 첨가을 진행하였으며, 다음과 같은 표와 같이 성분이 나타났음.

[Table.3] 서로 다른 비율로 첨가된 폐콘크리트의 원소성분분석 결과

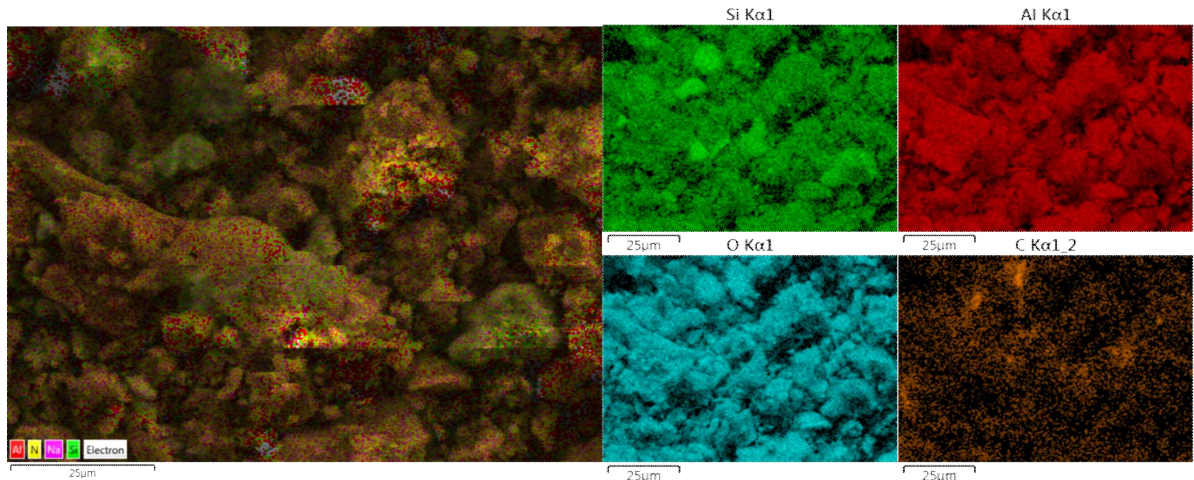
Element	Condition (wt%)			
	Raw	2:1	3:1	4:1
C	20.67	13.44	15.00	11.54
N	0.21	1.11	0.79	0.74
O	52.60	50.67	54.65	56.17
Na	2.00	8.42	1.98	1.60
Al	9.6	17.57	19.19	21.98
Si	14.91	8.79	8.39	7.97



[Figure.3] 2:1 알루미늄 첨가된 폐콘크리트 원소성분분석 결과



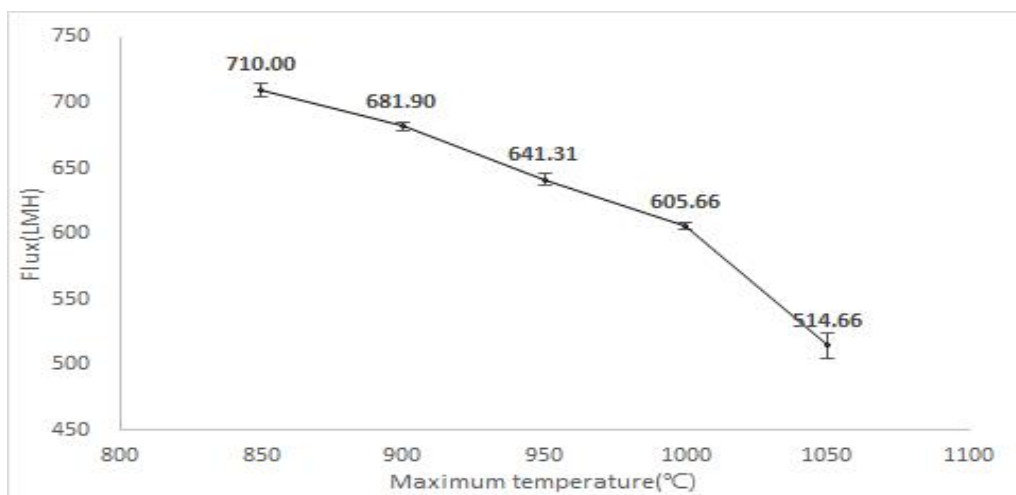
[Figure.4] 3:1 알루미늄 첨가된 폐콘크리트 원소성분분석 결과



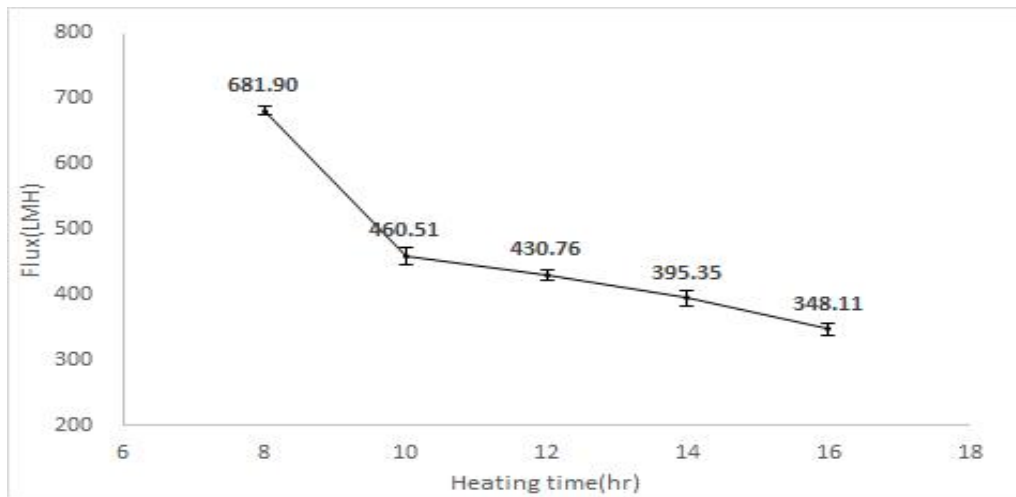
[Figure.5] 4:1 알루미늄 첨가된 폐콘크리트 원소성분분석 결과

● 서로 다른 영향인자 별 환경정화소재 성능테스트

- 서로 다른 알루미늄 성분비율을 갖은 폐콘크리트 가루를 환경정화용 소재인 세라믹 분리막으로 변환하였음.
- 세라믹 분리막의 성능을 분석을 위해 투과율을 실험하였으며, 이때, 초고순도 N₂ carrier gas를 이용하여 14.5psi의 압력을 일정하게 유지하고, 각 세라믹 분리막을 15분 동안 D.I water를 투과시킴. 초기 투과율은 압력이 안정화되지 않아 지속적으로 투과율은 상승함. 이후, 투과율이 안정화되었을 때를 기준으로 평균값을 해당 조건의 투과율로 선정하였음.
- 세라믹 분리막의 영향인자로 작용하는 소성온도 및 소성시간에 따라 서로 다른 세라믹 분리막을 제작하였음.
- 영향인자 별 2:1 세라믹 분리막은 다음 그림과 같은 투과율을 나타냄.

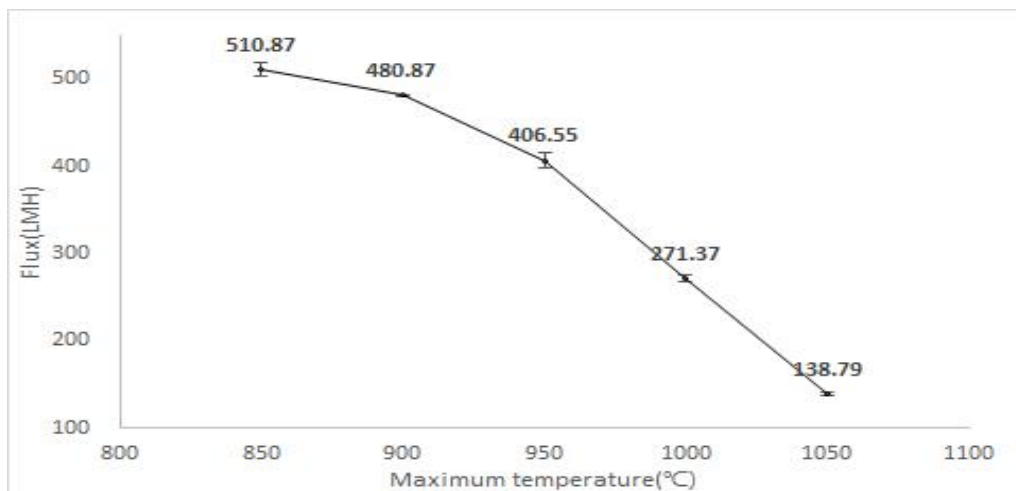


[Figure.6] 2:1 세라믹 분리막의 서로 다른 소성온도에 따른 투과율 변화

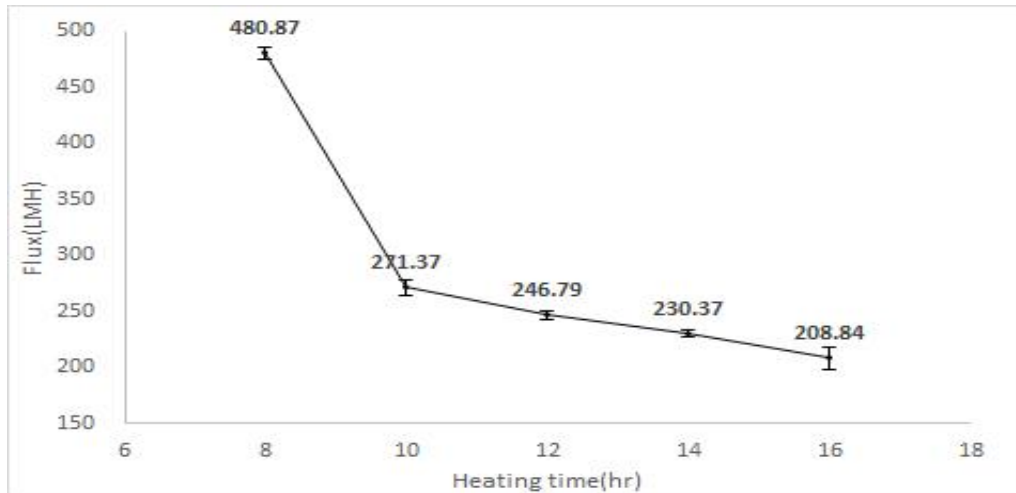


[Figure.7] 2:1 세라믹 분리막의 서로 다른 소성시간에 따른 투과율 변화

- 영향인자 별 3:1 세라믹 분리막의 다음 그림과 같은 투과율을 나타냄.

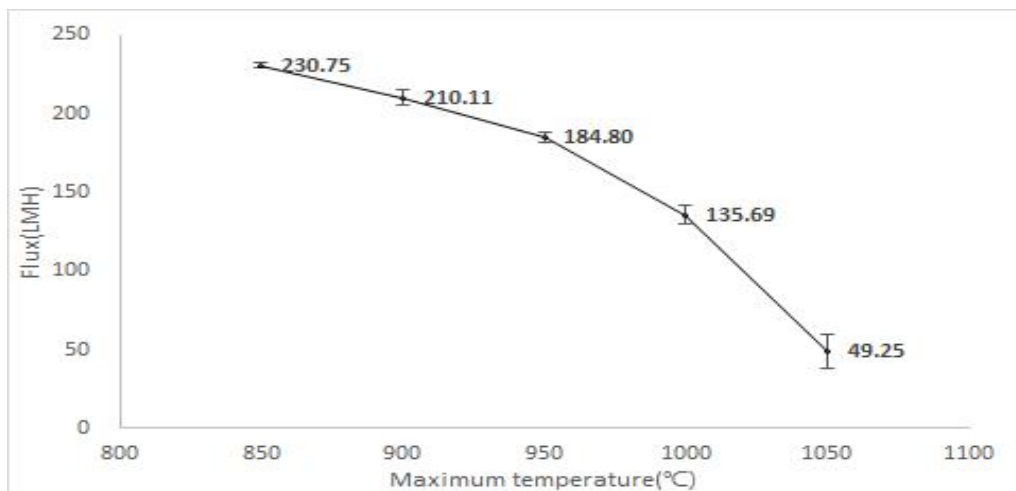


[Figure.8] 3:1 세라믹 분리막의 서로 다른 소성온도에 따른 투과율 변화

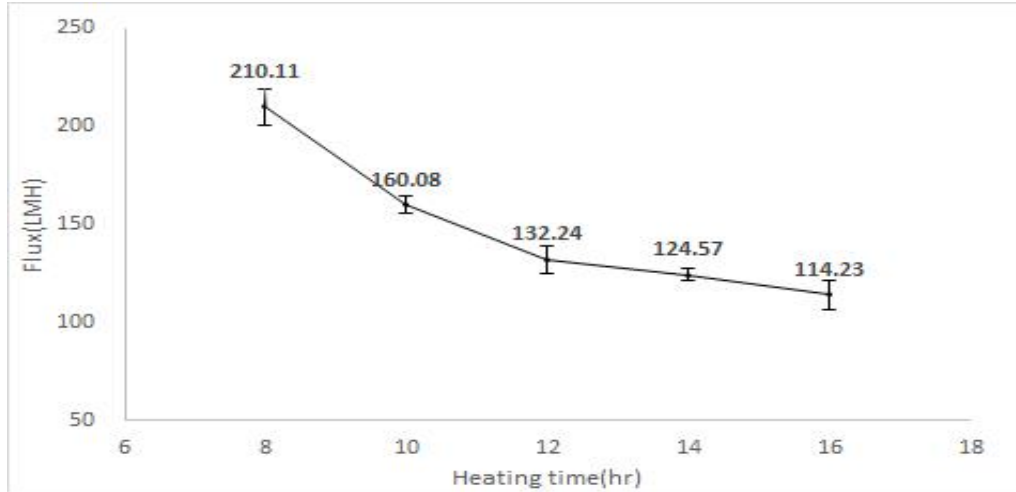


[Figure.9] 3:1 세라믹 분리막의 서로 다른 소성시간에 따른 투과율 변화

- 영향인자 별 4:1 세라믹 분리막의 다음 그림과 같은 투과율을 나타냄.



[Figure.10] 4:1 세라믹 분리막의 서로 다른 소성온도에 따른 투과율 변화



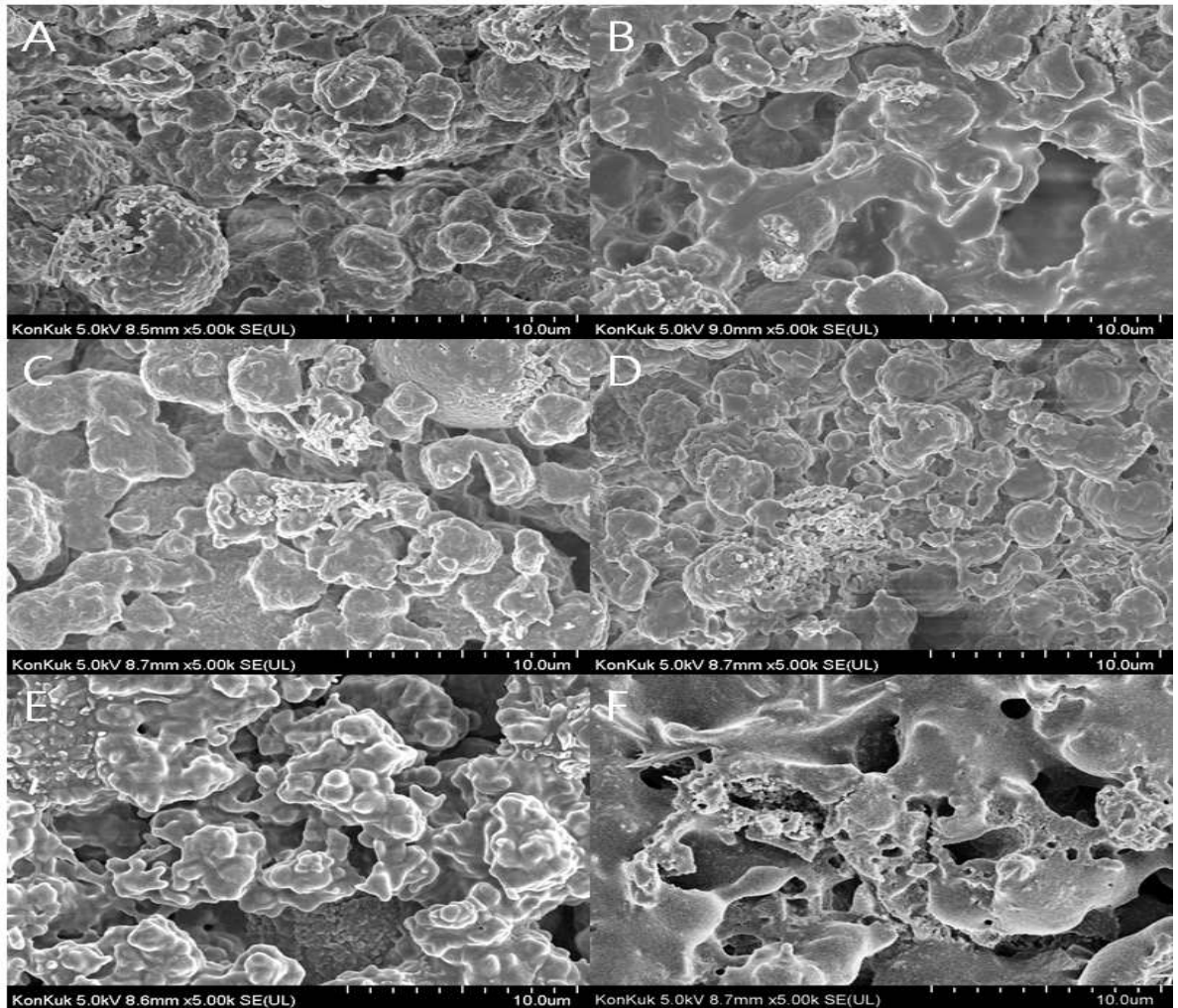
[Figure.11] 4:1 세라믹 분리막의 서로 다른 소성시간에 따른 투과율 변화

- 서로 다른 최고온도 조건에서 제작된 세라믹 분리막의 투과율은 850℃에서 소성된 세라믹 분리막부터, 1050℃에서 소성된 세라믹 분리막을 다음과 같이 투과율을 분석하였음.
- 또한, 서로 다른 소성시간에서 제작된 세라믹 분리막의 투과율을 8시간에서 소성된 세라믹 분리막부터, 16시간에서 소성된 세라믹 분리막을 다음과 같이 투과율을 분석하였음.
- 세라믹 분리막 소성조건에 따라 투과율 변화를 기반으로 기공의 크기 조절하는 것은 온도상승률을 조절하는 것이 더 크게 작용하였음.
- 소성온도의 증가는 급격한 투과율 감소를 나타냈고, 소성온도까지의 온도상승률은 비교적 낮은 투과율 감소를 나타냄.

[Table.4] 서로 다른 비율로 첨가된 세라믹 분리막의 투과율 감소율

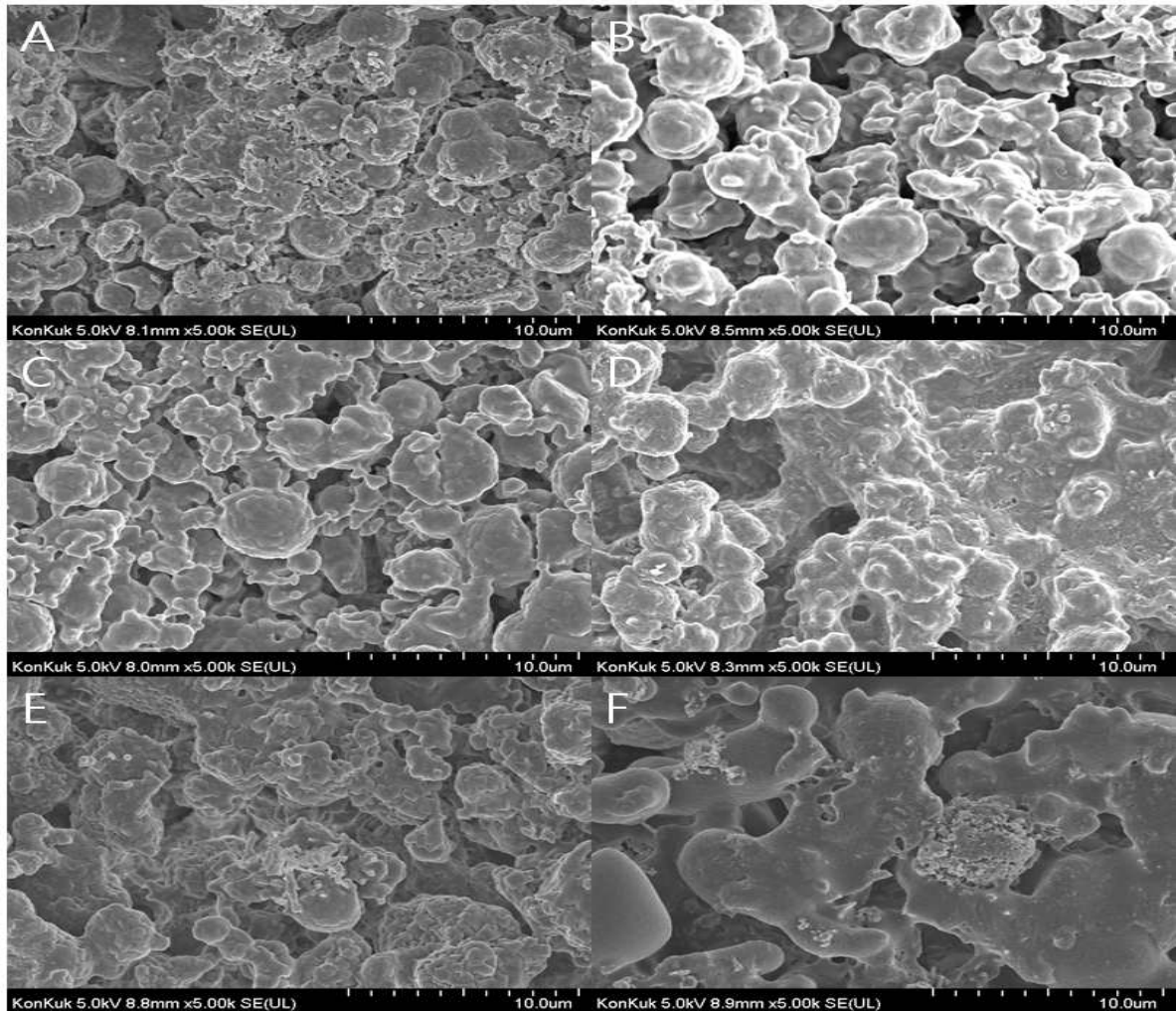
	Condition	
	Max. temperature	Heating time
2:1	27.513 %	48.950 %
3:1	72.833 %	56.570 %
4:1	78.657 %	45.633 %

- 서로 다른 비율로 첨가된 세라믹 분리막의 최저, 최고 소성온도의 막표면 분석을 통해 세라믹 분리막의 기공 크기를 확인하였음.



[Figure.12] 서로 다른 알루미늄 비율 및 최저, 최고 소성온도 조건에서의 세라믹 분리막 표면분석 결과(A: 850℃, 2:1, B: 1050℃, 2:1, C: 850℃, 3:1, D: 1050℃, 3:1, E: 850℃, 4:1, F: 1050℃, 4:1)

- 서로 다른 비율로 첨가된 세라믹 분리막의 소성시간에 따른 막표면 분석을 통해 세라믹 분리막의 기공 크기를 확인하였음.



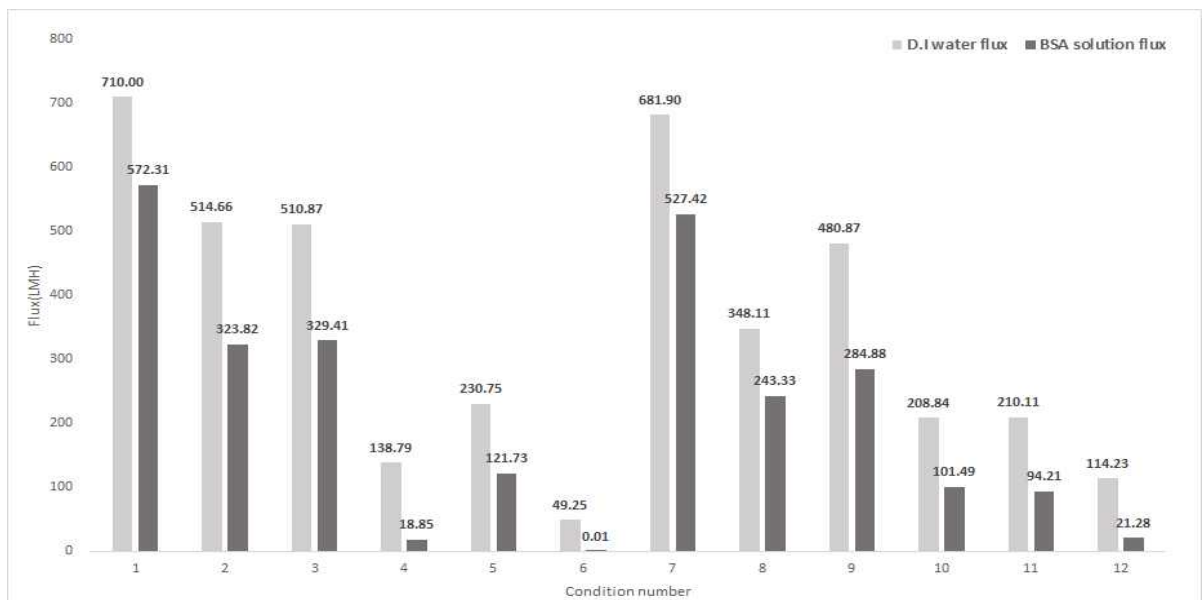
[Figure.13] 서로 다른 알루미늄 비율 및 소성시간 조건에서의 세라믹 분리막 표면분석 결과(A: 8hr, 2:1, B: 16hr, 2:1, C: 8hr, 3:1, D: 16hr, 3:1, E: 8hr, 4:1, F: 16hr, 4:1)

● 표준물질 기반의 환경정화소재 투과율 분석

- 표준물질을 이용한 세라믹 분리막의 특성을 확인하기 위해 66kDa 분자 크기의 Bovine serum albumin(BSA)과 800Da 분자 크기의 Methylene blue(MB)를 이용하여 성분을 분석하였음.
- 막표면 분석을 진행한 세라믹 분리막을 대상으로, 분자크기가 더 큰 BSA 물질을 이용하여 투과율 분석한 결과와 증류수를 통해 투과율 분석한 결과를 비교 분석 하였음.

[Table.5] 성능분석을 위한 각 조건 설정

Condition	
1	Max. temperature 850°C, 2:1
2	Max. temperature 1050°C, 2:1
3	Max. temperature 850°C, 3:1
4	Max. temperature 1050°C, 3:1
5	Max. temperature 850°C, 4:1
6	Max. temperature 1050°C, 4:1
7	Heating time 8hour, 2:1
8	Heating time 16hour, 2:1
9	Heating time 8hour, 3:1
10	Heating time 16hour, 3:1
11	Heating time 8hour, 4:1
12	Heating time 16hour, 4:1

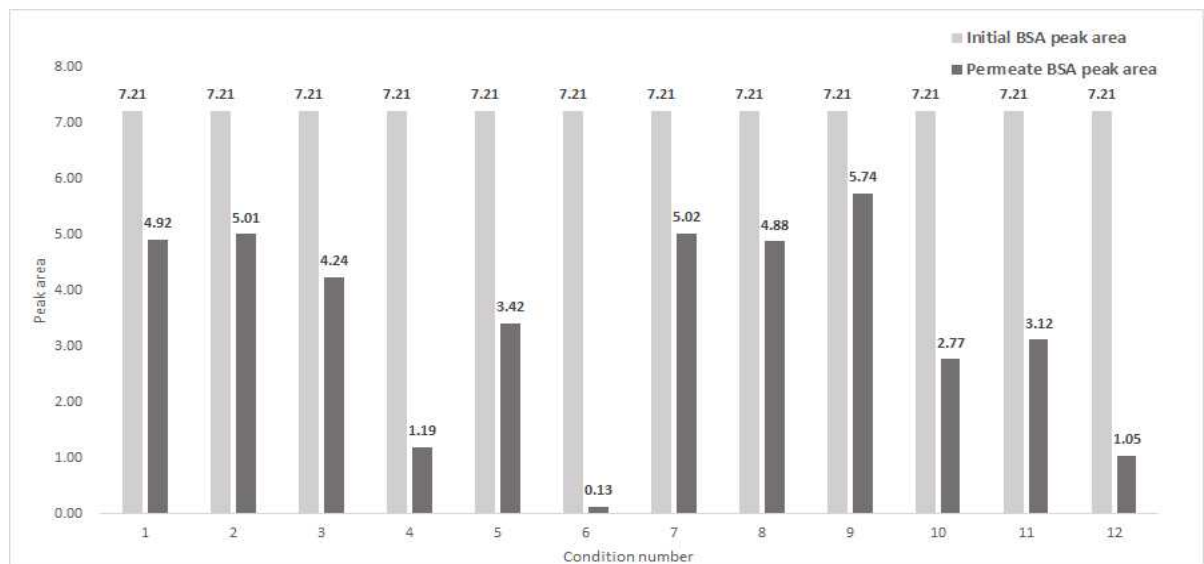


[Figure.14] 서로 다른 조건에 따른 증류수 및 BSA stock solution의 세라믹 분리막 투과율 변화

[Table.6] 각 조건 별 증류수 대비 BSA 투과율 감소 분석

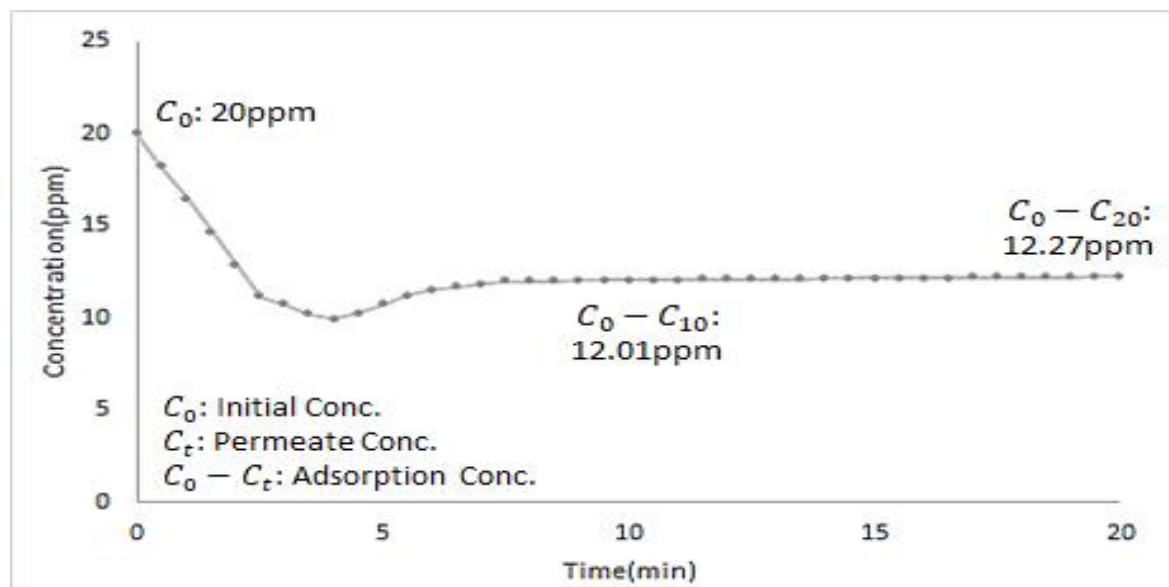
Condition	D.I flux (Lm ⁻² h)	BSA flux (Lm ⁻² h)	Reduction rate (%)
1	710.00	572.31	19.39
2	514.66	323.82	37.08
3	510.87	329.41	35.52
4	138.79	18.85	86.42
5	230.75	121.73	47.25
6	49.25	0.01	99.98
7	681.90	527.42	22.65
8	348.11	243.33	30.10
9	480.87	284.88	40.76
10	208.84	101.49	51.40
11	210.11	94.21	55.16
12	114.23	21.28	81.37

- 세라믹 환경정화소재를 이용한 BSA 표준물질의 제거율을 확인하기 위해 투과전, 후의 stock solution의 농도를 High performance liquid chromatography (HPLC)를 이용하여 확인함.



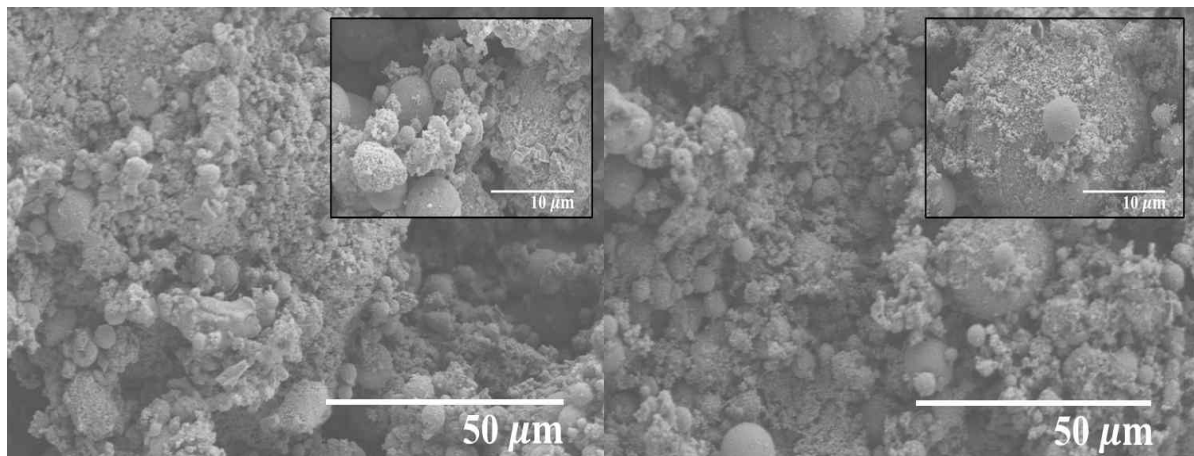
[Figure.15] 세라믹 멤브레인 투과 전후 BSA 농도변화

- 6번 조건에서의 BSA 표준물질의 제거율이 98.20%로 가장 높게 나타난 것을 기반으로 세라믹 분리막으로 인하여 제거되었음을 확인하였음.
- 또한, 6번 조건에 더 작은 분자크기를 갖는 800Da의 MB를 이용하여 추가적인 성능시험을 진행함.
- 세라믹 분리막을 투과한 MB solution을 시간에 따라 측정하였고, C0일 때의 농도를 확인하기 어렵기 때문에 흡광도를 기반으로 20ppm에서 세라믹 분리막 기공 내에 흡착된 농도를 확인하였음.



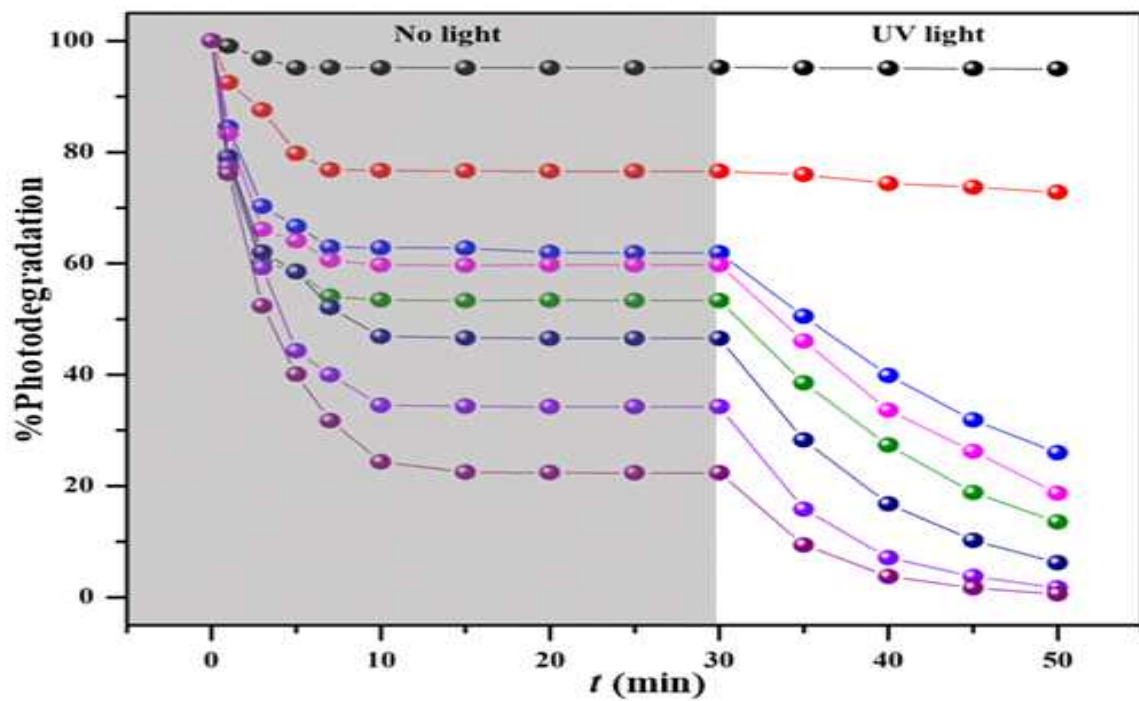
[Figure.16] 시간에 따른 세라믹 분리막 내에 흡착된 MB 농도의 변화

- 이 때, 투과율의 변화는 발생하지 않았으며, 투과된 MB 농도의 변화가 감소한 것으로 보아, 세라믹 분리막 표면 및 기공 내에 흡착 또는 여과되었음을 알 수 있음.
- 광촉매 금속산화물 첨가 및 제거율 분석
 - 소성온도 1050℃ 조건에서 4:1 조건의 세라믹 분리막 표면에 광촉매 금속산화물인 ZnO와 ZnO/rGO를 추가적으로 첨가함.
 - ZnO는 광촉매 역할을 수행하고, rGO는 오염물질의 균일한 이동 및 금속산화물의 지지체 역할을 수행함.



[Figure.17] ZnO를 첨가한 세라믹 분리막 표면(왼쪽), ZnO/rGO를 첨가한 세라믹 분리막 표면(오른쪽)

- 또한, 서로 다른 성분비를 갖는 ZnO 및 ZnO/rGO 샘플을 준비하여, 각각의 흡착율과 광촉매 반응을 확인하였다.



[Figure.18] 각 성분별 따른 MB 흡착율 및 UV를 이용한 MB 제거율

- 세라믹 분리막 표면에 흡착된 MB의 양을 확인하기 위해 MB Stock solution을 투과시켰으며, 흡착된 양을 확인함.
- 또한, 자외선 램프를 이용하여 세라믹 분리막 표면에서 제거되는 MB의 제거율을 확

인하고자, 20분 동안 자외선을 조사하였으며, 시간에 따른 MB의 변화율을 확인함.

- 또한, 자외선을 이용하여 광촉매 반응을 진행함에 있어 MB가 이산화탄소로 변화하는 것을 TOC 분석을 통해 확인함.

[Table.7] 각 조건별 MB 흡착율, 제거율 분석 및 TOC분석을 통한 이산화탄소 변화율 분석

Sample	Adsorption (%)	Photodegradation (%)	Mineralization (%)
Raw material	4.77	5.04	0.36
Activated C	23.42	27.23	10.35
ZnO/C (1:20)	38.11	74.02	31.30
ZnO/C (1:10)	40.25	81.33	36.25
ZnO/C (1:5)	46.67	86.45	42.70
ZnO/C/rGO (1:20)	53.45	93.82	68.86
ZnO/C/rGO (1:10)	65.76	98.34	66.21
ZnO/C/rGO (1:5)	77.65	99.41	70.34

● 건설 및 산업부산폐기물 전처리 공정 기반의 희유금속 회수기술 개발

- Table 8에서는 폐콘크리트와 폐아스콘의 희유금속 함량이 비슷한 것을 확인할 수 있으며, Ce 원소를 제외하면 폐아스콘보다 폐콘크리트에 포함된 희유금속 비율이 더 높은 것을 확인하였다. 모두 La, Ce, Pr, Nd, Sm, Gd 등 LREE와 Sc의 비율이 높고, HREE의 비율이 상대적으로 낮은 것을 확인할 수 있다. 또한 CREE에서 Y, Nd 원소가 높은 비율이 차지하는 것을 확인할 수 있음.

[Table.8] 본 연구에서의 건설 및 산업부산폐기물 희유금속 함량

Element	Coal ash (mg/kg)	
	페콘크리트	페아스콘
Sc	49.66 ±5.48	46.54 ±1.58
Y	12.78 ±2.32	8.84 ±0.35
La	7.00 ±1.38	5.90 ±0.12
Ce	19.32 ±2.16	23.40 ±0.27
Pr	2.06 ±0.38	1.70 ±0.03
Nd	8.39 ±1.49	7.11 ±0.07
Sm	2.24 ±0.39	1.87 ±0.07
Eu	0.56 ±0.15	0.49 ±0.03
Gd	2.49 ±0.42	2.15 ±0.07
Tb	0.42 ±0.14	0.31 ±0.01
Dy	2.63 ±0.39	1.88 ±0.06
Ho	0.58 ±0.14	0.39 ±0.01
Er	1.81 ±0.30	1.17 ±0.04
Tm	0.30 ±0.10	0.17 ±0.01
Yb	1.93 ±0.28	1.11 ±0.02
Lu	0.31 ±0.10	0.17 ±0.00
Total	112.50 ±15.62	103.21 ±2.77

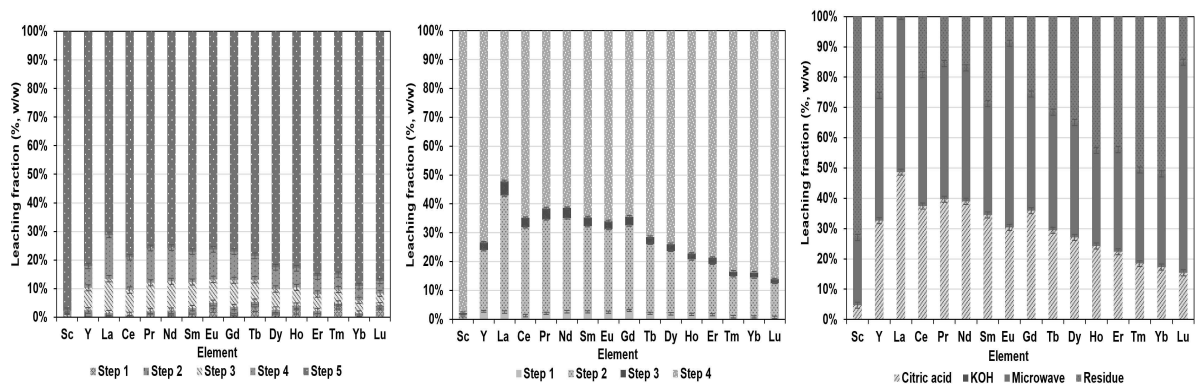
n=3

- 산·염기 용액을 이용하여 중금속이 용출되는 것을 감안하여, 건설 및 산업부산폐기물을 통해 희유금속을 회수할 가능성을 파악.
- 시트르산은 1단계에서 페콘크리트의 구성에 큰 영향을 주지 않고 페아스콘의 주성분인 SiO_2 , Fe_2O_3 , Al_2O_3 의 질량 분율 시트르산에 의해 크게 변화하지 않았다. 반면, CaO 는 현저하게 제거되어 시트르산 처리 후 페콘크리트 내 질량이 5.46%에서 1.47%로 감소하여 이단계에서 추출된 소량의 희유금속이 CaO 와 연관되어 있음을 알 수 있음.
- 2단계에서, 나머지 샘플의 SiO_2 성분은 KOH 에 의해 분리된 반면, 다른 3가지 주요 산화물(Fe_2O_3 , Al_2O_3 , CaO)은 용해되지 않은 것으로 관찰되었다. 이 과정에서 소량의 희유금속이 추출되었으며, 이는 희유금속이 SiO_2 에 결합된 것이 아니라 다른 성분에 결합되었음을 판단.
- 3단계에서 Microwave digestion 사용하여 Fe_2O_3 와 같은 다른 산화물들은 거의 제거된 것으로 나타났다. 희유금속 추출률이 41.07%로 증가하여 본 단계에서 추출된 희유금속이 Fe_2O_3 와 관련이 있음을 알 수 있다. 주요 성분인 Al_2O_3 는 다른 모든 성분이 제거된 후에도 변하지 않고 남아 있어 이는 샘플 포함된 희유금속의 강결합 및 추출 불가능한 부분으로 간주될 수 있음.

[Table.9] 서로 다른 산·염기 용액을 통한 잔여 성분 비율 분석 (XRF)

Formula	Mass balance of sequential extraction			
	Original (g)	Citric acid(g)	KOH(g)	Microwave(g)
SiO ₂	64.12	64.12	28.4	0.02
Al ₂ O ₃	17.34	15.56	14.05	14.05
Fe ₂ O ₃	6.81	5.93	5.93	0.09
CaO	5.46	1.47	1.34	0.58
TiO ₂	1.23	1.14	0.99	0.02
P ₂ O ₅	1.2	0.4	0.33	5.68
K ₂ O	1.03	0.97	1.21	0.84
MgO	0.96	0.63	0.53	0.62
Na ₂ O	0.85	0.63	0.51	-
SO ₃	0.81	0.11	0.09	6.36
others	0.20			
Total	100	90.95	53.36	28.24

- Microwave digestion 공법을 이용하여 열과 압력을 추가적으로 적용시켰을 때, 보다 효과적으로 희유금속이 추출되는 것을 파악.
- 새로운 연속추출법을 사용하면 희유금속 회수율이 69.63%에 이르렀고 BCR 추출법보다 평균 약 2.54배, Tessier 추출법보다 3.76배 높은 추출률을 나타내었다. La가 다 추출되었으며, Eu는 91.24%, Lu는 84.91%의 추출률을 나타내었다. CREE는 76.37% 이르렀고 기존 BCR 추출법보다 2.48배 높은 효율을 나타냄.
- HREE 추출률(61.10%)은 BCR 방법으로 얻어진 추출률보다 2.95배 높고 LREE 추출률이 83.61%에 달하여 훨씬 더 실질적으로 개선되었다. 또한, CREE 추출률(76.37%)은 BCR 방법으로 얻어진 추출률보다 2.48배 높았으며, Y와 Eu의 추출률은 다른 CREE의 평균 추출률보다 각각 2.79배, 2.69배 더 높았다. Tessier 방법과 BCR 방법을 이용한 Sc와 Lu의 추출은 무시할 수 있었지만, 새로운 연속추출법을 이용하였을 때 추출률은 각각 27.13%, 84.91%로 현저하게 증가했다. 해당 산업에서 매우 중요한 CREE인 Sc의 회수를 크게 향상시키는 것이 매우 바람직함.



[Figure.19] 기존의 연속 추출법 대비 새로운 연속 추출법의 용출정도 분석 (ICP/MS)

2.2.2 연구개발 자체평가

● 기술개발을 통한 폐기물 감축의 정량적 평가

- 연간 총 건설폐기물 발생량 중 폐콘크리트의 발생량은 64.22%, 폐아스콘의 발생량은 17.65%에 해당함.
- 폐콘크리트 전처리과정에서 발생하는 고상 부산물 기반의 환경정화소재인 세라믹 분리막을 제작이 가능하며, 액상 부산물 기반의 유가자원회수가 가능함.
- 고상 부산물(100%) 중 세라믹 분리막의 형태로 변환하였을 때, 약 38%의 부산물이 남은 것으로 확인되었으며, 액상 부산물에는 금속 이온 형태로 존재하게 됨.
- 이를 기반으로 폐콘크리트 기반의 환경정화소재 제작 및 유가자원회수를 진행하였을 때, 연간 총 건설폐기물 발생량의 24.40%의 폐기물을 자원화할 수 있을 것으로 판단.

● 환경정화소재 및 유가자원회수의 경제성 평가

- 폐콘크리트의 환경정화소재인 세라믹 분리막으로의 전환을 위한 다양한 영향인자 및 촉매금속을 통한 정량화를 진행하였으며, 성능시험을 통해 여과, 흡착, 촉매기능을 갖은 Hybrid 세라믹 분리막을 제작한 것을 알 수 있음
- 또한, 투과율 및 표준물질 기반의 성능시험 자료를 기반으로 한외여과(UF) 수준의 세라믹 분리막이 제작되었으며, 영향인자(소성온도, 소성시간, 알루미늄 함유량 등)을 조절하여 나노여과(NF) 수준의 세라믹 분리막 제작 가능성을 확인함.
- 폐콘크리트의 유가자원회수를 통한 다양한 영향인자 및 기법을 통한 정량화를 진행하였으며, 폐콘크리트 속 다양한 유가자원이 함유되어 있음을 확인하였음.
- 추출된 이온상태의 희유금속을 순도높게 고형화하여 제품화를 진행한다면, 상승하는 희유금속 단가에 대비하여 보다 저렴하게 희유금속을 회수할 수 있을 것으로 판단.

2.3 기대성과 및 활용방안

2.3.1 연구개발 기대성과

- ① 매립되는 건설 및 산업폐기물의 양이 대폭 줄어들어 매립지 포화, 불법매립, 침출수 유출에 따른 위험성이 낮아지고, 매립 폐기물의 양을 획기적으로 저감.
- ② 건설 및 산업폐기물과 같은 무기성폐기물의 자원소재화를 통한 산업부산물 문제를 해결.
- ③ 고효율/저비용의 재자원화된 소재의 사용으로 고부가가치 제품의 생산이 가능하고, 이를 통한 새로운 환경기술시장의 창출 및 확대에 따른 파급효과로 직/간접적 경제적 이득.
- ④ 기존 물리/화학적 처리방법의 높은 비용, 불안정한 처리효율, 부산물 발생문제, 화학약품투입 등의 문제점을 해결하고, 생물학적 처리방안의 낮은 처리효율, 운영의 어려움 등의 단점을 보완하는 친환경 신기술로 발전될 것으로 기대.
- ⑤ 유가자원회수를 통하여 기존에 매립 및 정제 등 막대한 처리 비용을 요구하던 건설 및 산업폐기물로부터의 경제적 이득.
- ⑥ 저비용/고효율의 천연구조체의 사용으로 경쟁성이 매우 높고, 새로운 환경기술시장을 개척 및 기술수출에 따른 파급효과로 신개념 환경정화기술개발의 선구자적 사례가 될 수 있음.
- ⑦ 석탄 사용량의 급격한 증가로 발생한 환경오염문제를 전반적으로 해결하여 친환경·녹색성장을 가능하게 함.
- ⑧ 신산업 창출을 바탕으로 유사·동종 업계를 활성화하여 경제성장의 원동력을 제공하고, 궁극적으로 삶의 질을 향상.
- ⑨ 환경적 부가가치 생산 기술로서 광범위한 기술개발의 선구자적 역할.

2.3.2 연구개발 활용방안

- ① 매년 발생하는 막대한 건설 및 산업부산폐기물의 매립처리물량의 대폭 감소, 환경부담의 큰 저감 효과.
- ② 2025년부터 시행되는 직매립 금지에 대비할 획기적 방안의 제시.
- ③ 폐기물로부터의 무기자원 회수를 위한 고효율 고도정제기술 개발.
- ④ 전처리정제과정을 통해 각종 불순물이 제거되어 레미콘 혼합제로 사용되는 석탄재 품질이 대폭 향상되어 재활용 비율이 증가하고 우수한 건축물 시공이 가능.
- ⑤ 회수된 무기자원을 이용한 환경/에너지 소재 및 제품과 공정 개발을 통한 고부가가치 창출.
- ⑥ 건설 및 산업부산폐기물의 재자원화를 위한 전처리 방법 제시.
- ⑦ 유가자원을 회수하기 위한 다양한 산, 염기처리, 열처리 등의 전처리 방법 제시.
- ⑧ 새로운 환경공학기술 분야 및 관련 산업과 시장 창출.

참 고 문 헌

- (1) 맹준호, 김태윤, 조한나, & 김은영. 2015. 「에너지자원의 환경관리전략: 화력발전소 회처리에 따른 환경영향 최소화방안 연구 (Ⅱ)」. 『사업보고서, 2015』. Vol. 158-379.
- (2) 산업통상자원부 2016, 「석탄화력발전에 대한 환경규제의 경제성 분석」
- (3) 환경부 2018, 「폐기물 처분 부담금 제도 해설서」
- (4) Chen. L. H., Chen. C. Y., Chen. C. H., Ko. C. C. Tung. K. L., "Sustainable membrane technology for water and wastewater treatment", J. Green Chemistry and Sustainable Technology, 1, 121-154, (2017)
- (5) Cho. H. N., Maeng. J. H., Kim. E. Y. "Studies on Expanding Application for the Recycling of Coal Ash in Domestic", 『J. Environmental Impact Assessment』26(6), 563-573(2015).
- (6) D. Vasanth, G. Pugazhenth, R. Uppaluri,. "Fabrication and properties of low cost ceramic microfiltration membranes for separation of oil and bacteria from its solution", J. Membrane Science, 379, 154-163, (2011)
- (7) Hendrik Verweij,. "Inorganic Membranes", J. Current Opinion in Chemical Engineering, 1, 156-162, (2012)
- (8) M. Ahmaruzzaman, "A review on the utilization of fly ash", J. Progress in Energy and Combustion Science, 36, 327-363 (2010).
- (9) M. C. Almandoz, C. L. Pagliero, N. A. Ochoa, J. Marchese,. "Composite ceramic membranes from natural aluminosilicates for microfiltration applications", J. Ceramics International, 41, 5621-5633, (2015)
- (10) M. Noack, P. Kolsch, V. Seefeld, P. Toussaint, G. Georgi, J. Caro. "Influence of the Si/Al-ratio on the permeation properties of MFI-membranes", J. Microporous and Mesoporous Materials, 79, 329-337, (2005)
- (11) Mahantayya Mathapati, Kiran Amate, C. Durga Prasad, M. L. Jayavardhana, T. Hemanth Raju,. "A review on fly ash utilization". J. materialstoday: PROCEEDINGS. 50, 1535-1540, (2022)

주 의

1. 이 보고서는 서울녹색환경지원센터에서 시행한 연구개발사업의 보고서입니다.
2. 이 보고서 내용을 발표할 때에는 반드시 서울녹색환경지원센터에서 시행한 연구개발사업의 연구결과임을 밝혀야 합니다.
3. 국가과학기술 기밀유지에 필요한 내용은 대외적으로 발표 또는 공개하여서는 아니됩니다.
4. 본 보고서 내용은 서울녹색환경지원센터에서 주지하는 내용과 다를 수 있습니다.



서울녹색환경지원센터

주소 : 서울시 동대문구 서울시립대로 163 서울시립대학교 제2공학관 215호

전화 : 02-6490-5400 팩스 : 02-6490-5407

홈페이지 : <http://sgec.uos.ac.kr>