

공학적 방벽의 열화평가를 위한 콘크리트-지하수 반응체계 분석

류지훈, 김건영, 고용권, 최종원, 박주완*

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

*한국방사성폐기물관리공단, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

irvu@kaeri.re.kr

1. 서론

방사성폐기물처분의 다중방벽개념에서 콘크리트는 벤토나이트와 함께 중요한 공학적 방벽 구성물질 중 하나이며 특히 중저준위폐기물 처분장에 있어서는 일반적으로 가장 중요한 공학적 방벽의 역할을 하고 있다. 처분시설의 공학적방벽은 시간의 경과와 함께 열화(Degradation)되어 궁극적으로는 방벽으로서의 역할을 상실하여, 처분된 폐기물이 자연 생태계로 유출된다. 특히 시멘트 물질로 이루어진 콘크리트 방벽의 경우, 수리전도도는 매우 낮지만, 지하처분 개념하에서 처분시설 주변 지하수와의 반응을 피할 수 없기 때문에 장기적 안전성이 보장되어야 하는 방사성폐기물 처분시설의 특성상 장기간의 콘크리트-지하수 반응에 의해 콘크리트의 용해 및 열화가 진행되어 주위 생태계로 핵종유출을 야기시키게 된다. 따라서 장기간에 걸친 공학적방벽과 지하수와의 반응, 특히 콘크리트-지하수 반응 및 이로 인한 콘크리트 방벽내의 시멘트계 물질의 물리/화학적 변화특성을 예측 할 수 있는 지하화 모델개발이 필수적으로 요구된다. 본 연구에서는 이러한 시멘트 수화과정과 열화과정에 대한 모델링 체계를 분석하고 시멘트의 수화과정 및 열화과정과 관련하여 시간에 따른 광물들의 함량 및 부피 변화, 그리고 그에 따른 공극의 변화를 열역학적 모델링으로 예측하여 보았다

2. 본론

2.1 모델링 수행 방법

본 연구에서는 기존 문헌에서 제시한 시멘트 조성광물과 관련된 열역학 데이터를 기존의 PHREEQC 2.0 프로그램[1]에 적용하여 연구 목적에 맞는 시멘트 수화과정 및 열화과정에 대한 모델링을 수행하였다. 물/시멘트(w/c) 비율은 0.4로 설정하여 시멘트 수화과정을 수행하였으며 시멘트 수화과정에 이어서 시멘트 페이스트에 대한 43,000년 기간동안의 열화과정을 모델링하였다.

본 모델링에서는 시멘트 페이스트의 총 두께를 1m로 가정하였을 때 이를 총 20개의 cell들로 나누고 따라서 각 cell의 두께가 5cm가 되도록 설정하였다(Fig. 1). 확산반응과 관련된 effective diffusivity 값은 $1 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ 로 가정하였다. 용해된 화학종의 activity coefficient 는 PHREEQC에 내재된 extended Debye-Hückel equation 으로 계산되었다.

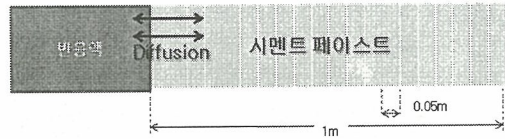


Fig. 1. Schematic diagram of the cement degradation modeling

시간에 따른 시멘트 열화과정에 의한 각 광물들의 부피와 이에 따른 공극률의 변화는 초기 공극이 없다고 가정하였을 때 초기 전체 부피를 각 광물의 부피의 합으로 설정하고 각 구간의 부피내에서 각 광물의 부피변화를 합산하여 공극률의 변화를 예측하였다.

2.2 모델링 결과

2.2.1 시멘트 수화과정

시멘트 클링커의 수화과정에 의한 생성광물 중에서 portlandite와 C-S-H의 농도함량은 상대적으로 높은 것으로 나타났다. C-S-H는 Ca/Si의 비율이 다양하게 나타날 수 있는데 portlandite가 C-S-H와 공존할 경우, C-S-H의 Ca/Si의 비율이 최고치(1.5~1.9)를 보인다. 시멘트 수화과정에 의해 생성된 소량의 광물들에는 AFm, AFt 등의 광물군들이 있다. 수화과정 생성광물 중에 portlandite와 $C_{1.67}SH_{2.1}$ 의 농도는 다른 생성광물에 비하여 상대적으로 높다. 이 밖에도 calcium monocarboaluminate, calcite, ettringite, hydrotalcite의 광물들이 시멘트 수화과정에 의하여 생성되지

만 그들의 농도는 상대적으로 낮다.

2.2.2 시멘트 열화에 의한 광물의 부피변화

시멘트 페이스트가 반응액과 반응을 시작하여 시멘트의 열화과정을 일으키면서 portlandite의 부피가 약 20년경 시멘트 표면에서부터 감소하기 시작한다. 이러한 portlandite의 부피 감소는 완만하게 오랜 기간을 거쳐 계속적으로 일어나며 약 10,000년 후에는 portlandite의 부피함량이 시멘트 cell 1(표면)에서 완전히 소멸되는 것으로 예측되었고 Cell 구간이 시멘트 표면에서 멀어질수록 portlandite의 부피감소는 적다. 약 40,000년 이후에는 시멘트 열화과정에 의하여 시멘트 표면부분에서 portlanite, ettringite, $C_{1.67}SH_{2.1}$, monocarboaluminate의 부피가 완전히 소멸한다. 반면에 같은 시점에서 Cell 1 구간에서 $C_{0.83}SH_{1.3}$, thaumasite, C_2ASH_8 의 부피가 증가함을 보여준다(Fig. 2).

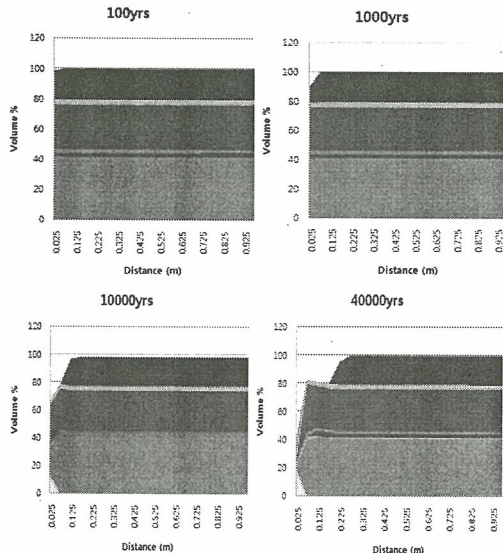


Fig. 2. Volume ratio of the cement minerals in each cells

2.2.3 시멘트 열화과정에 의한 시간별 공극률변화

시멘트 열화과정에 의한 구성광물의 변화가 가장 심한 Cell 1~3 (0-15cm) 구간에 대한 공극률을 계산하였다. Cell 1 (0-5cm) 구간에서는 상대적으로 다른 구간에 비하여 공극률이 높고 상승폭도 높을 것으로 예측되었다. 또한 공극률의 증가 추세가 시멘트 열화과정에 의해 지속적으로 상승하는 것으로 예측되었다. 이는 Cell 1 구간에서 높은 농도함량과 부피를 차지하는 시멘트의 주요 구성광물인 portlandite, ettringite, $C_{1.67}SH_{2.1}$

의 감소가 시멘트 열화과정에 의하여 일어나기 때문으로 판단된다. 시멘트의 열화과정에 의하여 주요광물들이 용해되어 그 부피가 감소되는 반면에 침전되어 생성되는 광물들은 상대적으로 미흡한 것으로 예측되었다. 따라서 Cell 1구간에서 공극률은 계속해서 증가하게 된다(Fig. 3). 반면에 Cell 2 구간에서는 약 3,000년경에 공극률의 상승이 시작되어 약 17,000년경에 0.2까지 도달하다가 17,000년경 이후부터 공극률의 감소가 이루어진다. 하지만 그 감소폭은 상당히 완만할 것으로 예측된다. Cell 3구간의 경우 공극률의 상승이 약 10,000년경에 시작되어 0.2까지 도달하다가 약 20,000년경이후부터 일정한 공극률은 유지하는 것으로 나타났다. Cell 2-3 구간에서 공극률이 최대 0.2를 넘지 못하는 현상은 시멘트의 주요 구성광물이 열화과정에 의한 용해반응이 Cell 1 구간에 비하여 미흡하기 때문으로 판단된다.

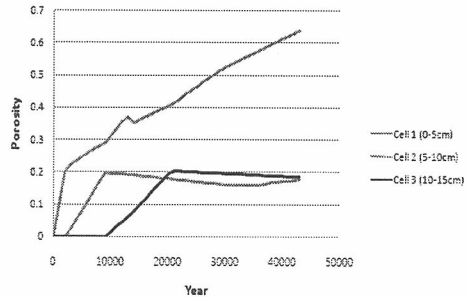


Fig. 3. Porosity changes by cement degradation

3. 감사의 글

본 연구는 2010년도 지식경제부의 재원으로 한국에너지 기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다(No.2009T100100523). 아울러 일부 교육과학기술부가 주관하는 원자력중장기 연구의 일환으로 수행되었습니다.

4. 참고문헌

[1] Parkhurst, D.L., (1995) User's guide to PHREEQC-A computer program for speciation, reaction path, advective transport and inverse geochemical calculations: U.S. Geological Survey Water-Resources Investigations Report 95-4227, 143p.