

탄산용액을 이용한 방사성 콘크리트 폐기물 제염

김완석, 김승수, 박혜민, 박옥량, 권혁주, 류오하, 김계남
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
zickim@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력시설 해체 시 전체 폐기물의 70% 이상을 차지하는 방사성 콘크리트 폐기물에 처리 중요성을 인식하고 있다. 국내에서도 2010년 우라늄 변환시설 복원 시 다량의 우라늄이 함유된 콘크리트 폐기물이 발생하였으며, 원자력 폐기물저장고에 약 1700 그램 정도 보관하고 있다. 한국원자력연구원의 폐기물저장고에 보관중인 콘크리트 폐기물은 200L 드럼 당 처분 비용을 처리 없이 처분할 경우, 예산이 많이 소요될 것으로 예상된다. 따라서 콘크리트 폐기물의 시멘트혼합물에 스며들어 있는 우라늄을 제거/회수하여 자체 처분함으로써 최종 처분 비용 절감을 도모할 필요가 있다.

콘크리트 혼합물에 함유된 우라늄을 선택적으로 회수/처리에 대한 연구는 지금까지 거의 수행되지 않았었다. 다만 고온/강산에 의한 우라늄과 다른 불순물을 용해한 후 회수/처리를 하였다. 이 고온/강산의 방식은 장치의 부식, 유독가스발생, 2차 폐기물 발생 등 후속 처리에 비용이 들어간다.

최근에는 장치 안전성과 후속 처리비용을 절감할 수 있는 측면에서 염기성인 탄산용액에 의한 우라늄 회수/처리 방법이 제시되고 있다.

따라서 본 연구는 연구원에 저장 중인 우라늄이 함유한 콘크리트 폐기물을 탄산용액 및 질산용액으로 세척하여, 이들의 우라늄 제거 특성과 효율을 비교하였다.

2. 본론

2.1 실험

2.1.1 시료 및 시약 제조

콘크리트 폐기물을 조크레서로 1차 파쇄한 후 입자크기가 1.0~5.6mm와 5.6mm 이상인 콘크리트 폐기물을 50g씩 제조하여 시료로 사용하였다. 세척용액으로는 물 500mL에 Na₂CO₃와 H₂O₂를 각각 0.25, 0.1M로 용해시킨 후, pH를 8.5~9.0로 조절하였다. 또다른 세척액으로는 1M의 질산용액을 사용하였다.

2.1.2 실험방법

모든 실험은 25±1℃에서 시료와 용액비율이 1g : 2mL가 되도록 하였으며, 온도, 교반속도, 시간 조절이 가능한 다중 교반기를 이용하여 120rpm에서 2시간동안 세척하였고, 같은 조건으로 2회 반복하였다. 질산용액과 탄산용액을 이용한 상세한 세척조건을 Table 1에 나타내었다. pH에 따라 탄산이온과 우라늄 화합물의 주요 화학종 분포를 Fig. 1에 나타내었다. 이 그림에서 우라늄이 pH 8.5 ~ 11에서 탄산용액에 UO₂(CO₃)₃⁴⁻로 용해되므로, 실험용액의 pH를 9로 조절시켜 세척하였다.

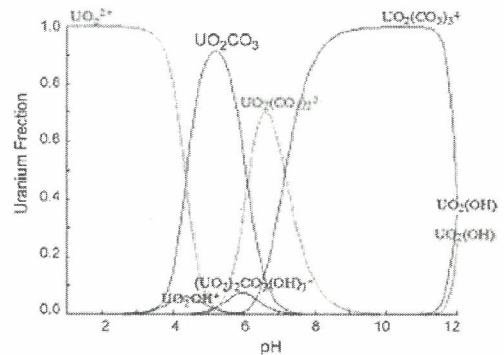


Fig. 1. Dissolution Curve by pH Distribution of Uranium.

Table 1. Washing Conditions.

용액	입자크기(mm)	세척조건
1.0M HNO ₃	1.0 ~ 5.6	1g:2mL, 2h/회×2
	5.6<	120rpm, pH 0
0.25M Na ₂ CO ₃	1.0 ~ 5.6	1g:2mL, 2h/회×2
	5.6<	120rpm, pH 9

2.1.3 분석

시료의 세척 전·후 우라늄 농도분석은 HPGe Gamma-ray Spectroscopy System기기를 이용하여 수행하였고, 용액의 세척 전·후 pH를 측정하였다.

2.2 결과 및 고찰

Fig. 2.는 세척 실험을 수행했을 때 pH 변화를 나타낸 것이다. 1차 세척 시에는 pH 변화가 2차 세척 시보다 크게 나타나는 것을 알 수 있다. 콘크리트 폐기물은 강알칼리성 물질로 pH가 13이상으로 올라가기 때문에 세척할 때 pH를 조절하지 않으면 세척을 제대로 수행할 수 없다. 탄산용액은 알칼리성 용액으로 pH 조절이 쉬운 반면, 질산의 경우 pH를 낮추기 위해 많은 양의 질산이 소요되었다.

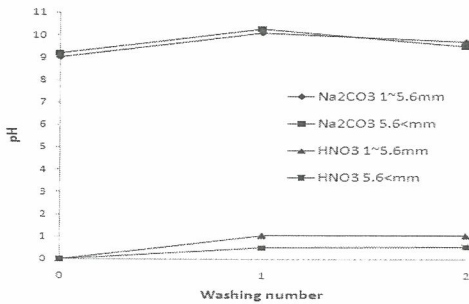


Fig. 2. pH Change of Particles Distribution by Carbonate Solution and Nitric Acid Solution.

용액별 우라늄 제거 효율을 Table 2에 나타냈다. 질산용액으로 세척하였을 시 제거효율이 50% 이상으로 나타난 반면, 탄산용액에서는 조금 낮은 40%이상의 제거효율을 나타냈다. 입자크기가 5.6mm 이상인 콘크리트 골재는 초기 오염도가 낮아 쉽게 탄산용액이나 질산용액으로 세척하여 0.4 Bq/g 이하로 낮출 수 있어 자체처분을 할 수 있는 가능성이 크다. 1.0~5.6mm부터는 오염도가 점차 커지며 제거효율도 떨어지는 경향으로 나타났다.

Table 2. Removal Efficiency of Uranium.

용액	입자크기 (mm)	세척 전 농도(Bq/g)	세척 후 농도(Bq/g)	제거율 (%)
HNO ₃	1.0 ~ 5.6	0.87	0.42	52
	5.6<	0.80	0.38	53
Na ₂ C O ₃	1.0 ~ 5.6	1.78	1.04	42
	5.6<	0.62	0.35	46

Table 3.은 세척 후 콘크리트 골재의 무게를 나타냈다. 질산용액으로 세척한 1.0~5.6mm 입자와 5.6mm 이상의 콘크리트 골재는 각각 15%, 12.6%의 무게비가 나타났다. 탄산용액으로 세척한 1.0~5.6mm 입자와 5.6mm 이상의 콘크리트 골재는 각각 2.2%, 1.6%로 세척 전 시료와의 무게 차가 거의 없다. 5.6mm 이상의 우라늄으로 오염된

콘크리트 폐기물은 질산용액 세척 보다는 탄산용액으로 세척하는 것이 더 효과적인 것으로 사료된다.

Table 3. Compare the Weight after Washing.

용액	입자크기 (mm)	세척전 무게(g)	세척 후 무게(g)	무게 비 (%)
HNO ₃	1.0 ~ 5.6	50	42.5	15
	5.6<	50	43.7	12.6
Na ₂ CO ₃	1.0 ~ 5.6	50	48.9	2.2
	5.6<	50	49.2	1.6

3. 결론

우라늄이 함유된 콘크리트 폐기물을 자체처분하기 위하여 탄산용액과 질산용액의 세척효율을 비교하였다. 콘크리트의 특성상 강알칼리성 물질이기 때문에 pH 조절에는 탄산용액이 수월한 반면, 질산용액은 pH를 낮추기 위해 많은 양의 질산이 소요된다. 질산용액으로 세척 시에는 많은 양의 불순물과 용해성 물질이 질산용액에 용해된다. 질산용액을 처리하면 2차 폐기물이 많이 배출될 것으로 사료된다. 반면 탄산용액으로 세척 시에는 우라늄만 선택적으로 용해시켜 2차 폐기물이 적게 배출될 것으로 사료된다. 따라서 질산용액보다 탄산용액으로 세척하는 것이 더 효과적인 방법이라 사료된다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국정부가 지원하는 한국과학기술재단의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] Byung-youn Min, Park-Jung Woo, Wang-Kyu Choi and Kun-Woo Lee, Separation of Radionuclide from Dismantled Concrete Waste, J. of the Korean Radioactive Waste Society, vol.7(2), P. 79-86, June. 2009.

[2] K. Popov, I. Glazkova, V.Yachmenev, and A. Nikolayev, Electrokinetic remediation of concrete: effect of chelating agents, Environmental Pollution, P. 1-7, 2008.

[3] Chong-Hun Jung, Byung-Youn Min, Wang-Kyu Choi, Kun-Woo Lee, Separation and stabilization of radionuclide from dismantled concrete wastes by heating-milling method, Korean Society of Thermal Environmental Engineers, P. 329-335, 2008.