

원전 콘크리트 제염 해체시 발생하는 시멘트 페이스트 미분말의 재활용 기술

Recycling of cement paste separated from decommissioning process of concrete in nuclear power plant



정철우 Chul-Woo Chung
부경대학교 건축공학과
부교수
E-mail: cwchung@pknu.ac.kr



김지현 Ji-Hyun Kim
부경대학교 융복합인프라기술연구소
전임연구교수
E-mail: kjh@pknu.ac.kr

1. 머리말

원자력 발전소 (원전) 구조물의 가동 기간 동안 콘크리트가 높은 레벨의 방사선에 노출 되면, 중성자에 의해 콘크리트의 방사화가 발생하게 된다. 원전의 일부 콘크리트는 방사성 원소에 의해 표면 오염이 발생하기도 한다. 방사화되었거나 표면 오염이 발생한 콘크리트의 처분 방법의 결정은 콘크리트 내부에서 나오는 방사선량에 달려 있다고 볼 수 있는데, 콘크리트 폐기물은 방사화나 표면 오염이 발생하여도 방사능 레벨이 다른 종류의 원전 폐기물보다 낮기 때문에, 일반적으로 고정화 (고정화)를 통해 덩어리 형태로 만든 후 지정된 폐기물 처분장에 저장하여 보관하게 된다. 이 방법은 폐기물의 처리 비용이 상대적으로 저렴한 국가들에서 사용하는 가장 일반적인 방법이지만, 우리나라의 경우 방사성 폐기물 처분 비용이 세계에서 가장 비싼 관계로 (미국의 약 3배 정도), 원전 해체시 발생하는 방사성 폐기물의 절대량을 줄여야 하는 문제가 발생하게 되었다.

콘크리트에 다량의 중성자가 조사되게 되면 상당한 양의 원소가 방사화되는데, 방사화된 원소는 대부분의 경우 반감기가 매우 짧아 원전 가동을 멈추고 제염 해체를 준비하는 약 5년간의 기간 동안 (cool-down 기간) 방사선을 잃어버리게 된다. 콘크리트에서 방사화는 골재에서는 발생하지 않고¹⁾, 시멘트 페이스트 성분에서만 발생하는 것으로 알려져 있으며, 이는 시멘트 제조 시 함유된 미량의 원소들과 관련이 있는 것으로 보고되었다. 실제 콘크리트의 제염 해체시 고려해야 할 시멘트 페이스트 내부의 방사성 원소는 ⁶⁰Co 및 ¹⁵²Eu로 볼 수 있으며, 방사성 원소에 의한 콘크리트의 표면 오염은 대부분 ¹³⁷Cs에 의해 발생하는데 이는 시멘트 페이스트의 공극구조에 흡착되어 시멘트 페이스트에 존재하는 것으로 알려져 있다. 따라서 시멘트 페이스트 성분을 선별적으로 콘크리트로부터 떼어낼 수 있는 기술의 개발이 가능하다면, 분리된 시멘트 페이스트만 방사성 폐기물로 분류하여 처분하고, 골재를 규제 해제 폐기물로 처리할 수 있게 되어 콘크리트 제염 해체시의 폐기물 처분 비용을 크게 절감할 수 있다.

1) 실리케이트 계열의 골재는 방사화를 받으면 결정 구조가 붕괴되어 비결정성이 서서히 증대되는 것으로 알려져 있다. 이로 인해 재료의 밀도가 감소하고 팽창이 발생하여 콘크리트의 균열을 초래할 수 있지만, 원자 자체에서 방사화가 발생하지는 않은 것으로 알려져 있다.

이렇게 선별된 방사화된 시멘트 페이스트 성분은 분말 형태로 존재하기 때문에, 이동 및 확산을 제어하기 위해 반드시 고화 처리를 진행하여야 한다. 그래서 본 기술기에서는 시멘트 페이스트 성분을 분리 선별하는 방법에만 집중하지 않고, 이를 재활용하여 다른 형태의 방사성 폐기물 고화 처리에 재활용할 수 있는 방법에 대해 함께 설명하고자 한다. 방사화된 시멘트 페이스트를 고화제로 재활용하게 되면, 고화체에서 차지하는 고화제의 비율만큼 방사성 폐기물 (선별된 시멘트 페이스트)로 대체하므로 (방사성 폐기물로 방사성 폐기물을 고화처리함) 환경적 부담을 줄일 수 있고, 고화 처리에 필요한 제반 비용 (재료비, 공정운영비, 처분비 등) 또한 함께 절감할 수 있는 이점을 가진다.

2. 페모르타르에서의 시멘트 페이스트 성분 분리 선별

방사화 콘크리트의 제염 해체는 기본적으로 순환골재를 생산하는 방법에 따라 진행된다. 이는 굵은골재 및 잔골재에 부착된 시멘트 페이스트 성분을 탈락시켜 최대한 청정한 상태를 갖도록 파쇄 및 마쇄하는 것을 의미한다. 그러나 현존 순환골재 처리 공정에서는 대부분 습식 방법을 사용하고 있는데, 이 방법을 방사화 콘크리트의 제염 해체에 적용하는 것은 불가능하다. 이는 습식 처리방법을 활용하는 경우, 처리수로 방사성 원소가 용출되어 반드시 처리수 활용된 폐수에 대해 방사성 폐기물 처분절차에 따라 고화처리를 진행해야 한다는 문제점이 발생하기 때문이다. 바꾸어 말하면 습식 공정을 사용하면 방사성 폐기물의 양을 증가시키게 되며, 이로 인해 추가적인 경제적, 환경적 부담이 발생하게 된다. 이는 방사화 콘크리트의 제염 해체시 반드시 건식 분리방법을 사용하여야만 한다는 것을 의미한다.

건식 처리방법을 통해 시멘트 페이스트 성분을 효율적으로

분리시키는 방법은 600~700 °C의 온도에서 열처리를 진행하는 방법이 대표적이다^[1, 2], 이는 건조 및 탈수과정에서 발생하는 미세균열 및 시멘트 페이스트와 골재의 열팽창 계수 차이와 냉각 속도 차이로 인해 발생하는 미세균열로 인해 골재로부터 시멘트 페이스트 성분의 분리가 촉진되기 때문이다. 이렇게 처리된 페모르타르에 물리적 충격을 가하면 골재에 함유된 페이스트 성분이 보다 수월하게 선별 분리될 수 있는데, 공교롭게도 600 °C의 온도에서의 열처리는 시멘트 페이스트로부터 수산화칼슘을 탈수시켜 생석회로 전환시키는 동시에 C-S-H에서의 탈수도 함께 동반하여 시멘트 페이스트 성분의 수경성을 회복하게 하므로^[3, 4, 5], 이를 고화제로 재활용할 수 있는 가능성이 발생하게 된다.²⁾

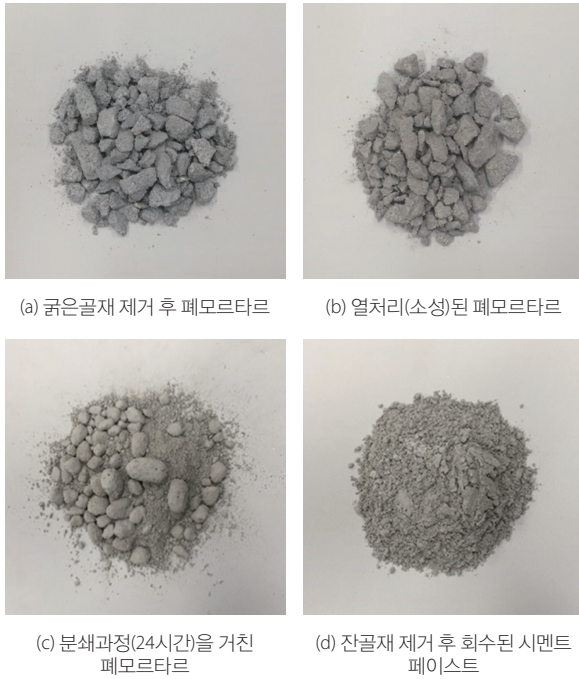
페모르타르 성분에 물리적 충격을 가하는 과정에서 골재의 일부가 분말의 형태로 떨어져 나올 가능성이 존재하는데, 이러한 골재 미분말의 존재는 열처리된 시멘트 페이스트의 반응성을 떨어뜨린다. 이는 골재 미분말이 수화반응에 거의 관여하지 않기 때문이다. 따라서 골재의 선별 공정시 과도한 충격량을 가하게 되면 시멘트 페이스트 내부의 골재 미분량이 증가하므로 고화제의 강도가 감소하게 된다. 이에 따라 본 기술기에서는 볼밀 (ball mill)을 사용하되 내부에 분쇄용 ball을 넣지 않고, 페모르타르 자체만의 상호 마찰을 통해 (자가충격 방식) 상대적으로 미세균열이 많이 발생한 페모르타르로부터 시멘트 페이스트 분을 잔골재 표면에서 깎아내는 방법을 적용하였다. 상호 마찰을 이용하여 분쇄 처리된 페모르타르는 표준체 150 μm를 기준으로 150 μm 체를 통과한 부분은 시멘트 페이스트, 통과하지 못한 부분은 잔골재로 구분하였다.

골재로부터 시멘트 페이스트의 분리에 적용된 방법은 [표 1]에 요약 정리하였으며, 분리 과정에서의 골재 및 시멘트 페이스트 미분말의 형상은 <그림 1>에 나타내었다.

[표 1] 잔골재로부터 시멘트 페이스트의 분리에 적용된 방법 요약

번호	구분	분리과정			횟수	비고
		열처리 (시간)	분쇄 (시간)	분리 선별		
1	24 hr-1cycle	2	22	○	1	총24 hr 소요

2) 600 °C보다 더 높은 온도에서 열처리를 진행하면 탄산칼슘으로부터 이산화탄소를 제거하여 다량의 생석회를 얻을 수 있는데, 이는 실제 폐기물 고화처리시 작업성의 문제 뿐만 아니라 수화열 발생으로 인한 온도상승의 문제로 대규모 처리가 불가능해지므로 권고하지 않는다.



(a) 굵은골재 제거 후 페모르타르

(b) 열처리(소성)된 페모르타르

(c) 분쇄과정(24시간)을 거친 페모르타르

(d) 잔골재 제거 후 회수된 시멘트 페이스트

그림 1. 페모르타르의 열처리 및 분쇄 후의 형상 [modified from ref. 6]

잔골재 표면에 부착된 시멘트 페이스트의 형태를 확인하기 위해 페모르타르에서 분리된 잔골재 중 육안으로 잔골재와 시멘트 페이스트의 분리가 명확하여 X-Ray CT 분석이 용이하다고 판단된 600 μm ~2.5mm 범위의 입도를 가진 잔골재를 선별하여 <그림 2>에 나타내었다. 각 분리과정을 거친 잔골재의 표면 CT 촬영 결과 (<그림 2>의 오른쪽 이미지 참조), 잔골재 표면에 부분적(굴곡진 부위 내부 또는 평평한 면)으로 시멘트 페이스트의 일부가 잔존해 있는 것을 확인할 수 있었다. 본 실험의 결과는 페모르타르에서 분리된 전체 잔골재를 대상으로 한 것은 아니며, 그 중 일부 (600 μm ~2.5mm 범위의 입도) 잔골재를 선별하여 표면에 부착된 시멘트 페이스트의 특성을 파악한 것이므로 다소의 오차는 존재한다는 점에 유의해야 하지만, 대체적으로 육안으로 상당히 깨끗한 골재의 표면이 확인되었으며, X-Ray CT 분석 결과 또한 시멘트 페이스트의 부착률이 최대 0.078%로 나타나 본 기술기사에서 제안한 방법이 상당히 높은 시멘트 페이스트 분리 효율을 가지고 있음을 알 수 있다.

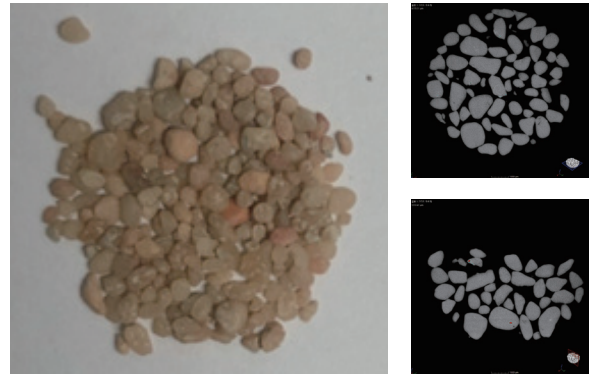


그림 2. 열처리 및 분쇄 이후의 순환잔골재 형상 [modified from ref. 6]

3. 분리된 시멘트 페이스트를 활용한 고화체 제조 및 인수 가능성 평가

분리된 시멘트 페이스트 성분의 고화체 재활용 가능성을 확인하기 위하여 3M의 CsCl 및 3M의 CoCl_2 수용액을 제조하고, 150 μm 체를 통과한 시멘트 페이스트와 배합하여 고화처리를 진행하였다. 고화처리는 일반 시멘트 페이스트의 배합과정을 따라 진행하였고, 선별된 시멘트 페이스트 자체가 상당한 양의 단위수량을 요구하기 때문에 (시멘트에 비해 매우 높은 비표면적을 가짐^[6]; 포틀랜드 시멘트 1.22 m^2/g , 분리된 시멘트 페이스트: 12.37 m^2/g), 상대적으로 높은 수용액의 비율을 가지는 고화체 (수용액 대비 분리된 시멘트 페이스트의 중량 비율은 0.7)를 제조하였다. 고화체의 양생 시 물과의 직접적인 접촉을 피하기 위해 저장용 컨테이너의 바닥에 물을 깔아둔 후, 그 위에 공시체 고정용 판을 위치시키고 공시체를 놓은 후, 저장용 컨테이너를 마개로 덮어 밀봉하여 수분의 이동을 막고 양생을 진행하였다.

<그림 3>의 고화체 압축강도를 확인하면 강도 자체는 크게 높게 나타나지 않았지만, 모두 고화체 인수기준인 3.44 MPa를 상회하는 것을 알 수 있다. 시멘트 페이스트 성분에서 골재의 미분말이 상당량 존재한다는 것을 감안하면, 선별된 시멘트 페이스트 성분이 충분히 다른 종류의 방사성 폐기물 고화처리에 재활용 될 수 있는 가능성이 존재한다는 것을 알 수 있

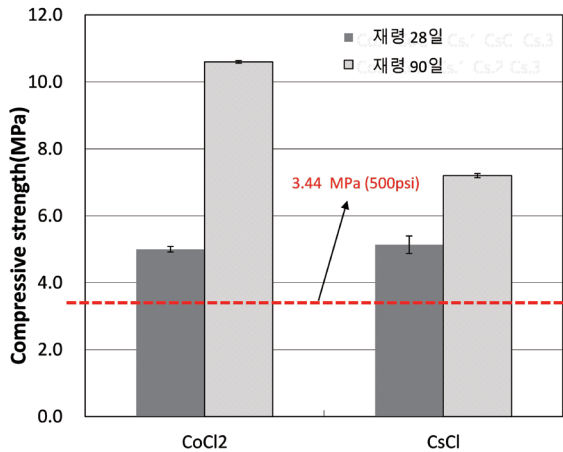


그림 3. 고화체의 압축강도

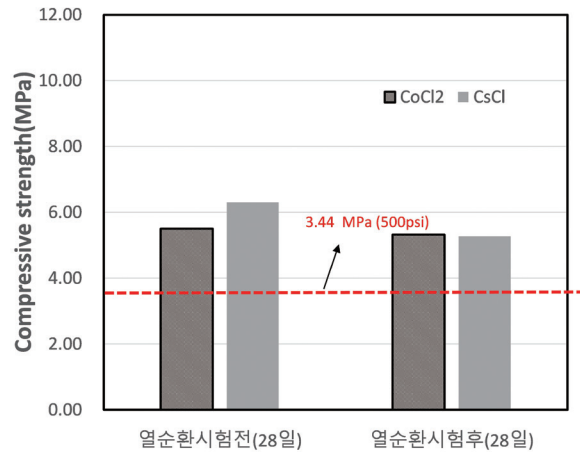


그림 4. 열순환 시험 후 압축강도

[표 2] 선별된 시멘트 페이스트로 제조된 고화체의 Co 및 Cs 유출도 지수

유출시간 (days)	Leachability Index	
	CoCl ₂ , 3M	CsCl 3M
0.083	17.20	6.65
1	17.56	7.06
2	17.87	7.55
7	18.46	8.96
14	18.71	11.61
28	18.66	14.06
42	18.69	14.60
49	18.69	14.76
63	18.65	15.30

다. 또한 재령이 91일로 증가하면서 압축강도의 상승 또한 확인 되었는데, 이는 포틀랜드 시멘트 계열 결합재료의 전형적 특성으로 장기적으로 갈수록 고화체의 안정성이 증가한다는 것을 의미한다.

<그림 4>에는 고화체의 열순환 시험 이후 측정된 압축강도 (28일 재령) 데이터가 나타나 있다. 열순환 시험은 고화체의 주변온도 변화에 대한 내구성을 측정하는 것으로 ASTM B553의 규준에 따라 진행되며, 고화체의 인수조건을 만족하는 하나의 시험 기준에 해당된다. <그림 4>에서 나타난 데이터에 따르면 고화체의 압축강도가 열순환 시험을 거친 후에도

여전히 인수기준인 3.44 MPa를 상회하는 것으로 나타났다.

[표 2]에는 EPA 1315 시험 방법에 의해 측정된 Co 및 Cs의 유출도 지수를 나타내었다. Co 및 Cs 모두 유출도 지수 6 이상의 값을 보여, 고화체 인수조건을 만족하는 것으로 나타났다. <그림 3, 4>의 결과를 종합적으로 판단하면, 콘크리트로부터 열처리 및 자가충격방식을 활용하여 선별된 시멘트 페이스트 성분은 방사성 폐기물 고화처리용으로 충분히 재활용 가능함을 알 수 있다.

4. 첨언

콘크리트로부터 얻어진 시멘트 페이스트의 수화반응성은 원재료 콘크리트의 물성에 상당한 영향을 받는다. 탄산화 정도는 매우 중요한 요소 중 하나인데, 이는 일정량의 생석회 성분이 반응을 위해 필요할 수 있기 때문이다. 만약 탄산화 정도가 매우 높아 수산화칼슘이 전혀 없는 경우에는 열처리 온도를 다소 상승시켜 일정 수준의 생석회를 확보할 필요가 생길 수 있는데, 너무 높은 온도에서 처리하는 경우 생석회의 생성량이 과다해져 작업성의 손실이 생기고, 이로 인해 사람이 장비로 직접 접근해서 문제를 해결해야 하는 상황이 발생할 수

있다³⁾. 또한 다량의 수화열 발생으로 인한 급결 및 균열발생 등의 문제로 강도 약화, 표면 크러스트 생성, 채움률 부족 등의 문제가 발생할 수 있다는 점에도 유의하여야 한다. 따라서 열처리 온도를 변경할 필요가 발생하는 경우에는 선별된 시멘트 페이스트의 반응성을 정밀하게 검증하여 진행하되, 별다른 이유가 없는 경우에는 가급적 본 기술기사에서 권고하는 600 °C를 유지하는 것이 좋다고 판단된다.

만약 선별된 시멘트 페이스트의 반응성이 부족하다면 일정량의 포틀랜드 시멘트 계열 결합재를 함께 사용하는 것을 추천한다. 이는 선별된 시멘트 페이스트 자체가 포틀랜드 시멘트로부터 유래된 재료이며, 반응 기제 또한 포틀랜드 시멘트의 반응 기제와 상당히 유사하기 때문에^[6] (에트링가이트 생성 등) 혼합 사용하더라도 이상반응과 같은 문제가 발생하지 않기 때문이다. 방사성 원소의 고정화 성능이 높다고 알려진 고로슬래그 미분말 및 수화열 발생을 제어하기 위한 플라이애시의 혼합 사용 또한 고려할 수 있는데, 고로슬래그의 경우 반드시 gehlenite가 생성되지 않은 급랭슬래그여야 하며, 플라이애시는 ASTM F급 중 칼슘 함유량이 5% 이하인 것을 권고한다. 현재 유통되는 시멘트 대체재료의 품질 변동이 상당히 심한 편이라는 점을 반드시 유념하고 (특히 플라이애시), 방사성 폐기물의 고화처리를 위한 고화제 배합비율을 설계할 때에는 재료의 화학적 성분 및 광물학적 성분 변화를 면밀하게 분석하여 대응하는 것을 권고한다.

5. 맺음말

본 기사에서는 콘크리트 제염 해체시 시멘트 페이스트 성분을 선별하는 방법 및 이의 재활용 방법에 대해 기술하였다. 선별된 시멘트 페이스트는 액상 형태의 방사성 폐기물 고화처리에 재활용 될 수 있음이 확인되었으며, 모든 고화제 모두 인 수기준을 만족하여 실제 적용 가능성을 입증하였다. 그러나

본 기술기사에서 상당히 기초적인 수준의 단일 화학조성을 가진 액상형태의 폐기물의 고화처리에 대해서만 선별된 시멘트 페이스트의 적용성을 검증하였으며, 실제 방사성 폐기물에 대한 적용성까지는 검증하지 않았다. 실제 방사성 폐기물은 매우 다양한 물리·화학적 조성을 가지며, 액체 및 고체가 혼재하는 슬러리 상태의 폐기물도 상당수 존재한다는 점을 감안하면, 유사한 형태의 폐기물 고화처리 성능 또한 추가 검증이 필요할 것으로 사료된다.

감사의 글

본 연구는 2020년도 산업통상자원부의 재원으로 한국에너지기술연구원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구과제입니다. (No.20161510300420)

참고문헌

1. Min, B.Y., Choi, W.K., Lee, K.W., 2010. Separation of clean aggregates from contaminated concrete waste by thermal and mechanical treatment. *Annals of Nuclear Energy*. 37(1), 16–21.
2. Ham, S.S., Hong, S.K., Nam, S.S., Kim, W.S., Um, W.Y., 2020. Decontamination of concrete waste from nuclear power plant decommissioning in South Korea. *Annals of Nuclear Energy*. 149, 107795.
3. Ahn, J.C., Lee, J.H., Kang, B.H.(2003), "Properties of recycle cement made of cementitious powder from concrete waste by conditions of burning", *Journal of Architectural Institute of Korea*, v.19 n.11, pp.109–116.
4. Moon, Y.B., Choi, H.K., Kim, J.Y., Lee, J.H., Chung, C.W., Kim, J.H.(2017), "Recycling Waste Paste from Concrete for Solidifying Agent", *Journal of the Korea Institute of Building Construction*, v.17 n.3, pp.269–277.
5. Oh, S.K.(2002), "A Study for the Hydration Recovery of Recycle Cement Using Waste Concrete Powder", *Journal of Architectural Institute of Korea*, v.18 n.10, pp.53–60.
6. Kim, J.-H., Seo, E.-A., Kim, D.-G., Chung, C.-W.(2021), "Utilization of Recycled Cement Powder as a Solidifying Agent for Radioactive Waste Immobilization", *Construction and Building Materials*, Vol. 289, 123126.

담당 편집위원 : 최명성(단국대학교)

3) 사람이 직접 고화처리 장비에 접근하는 것을 최소화시켜야 하므로, 작업성의 문제는 반드시 해결되어야 한다.