

# 원전 폐콘크리트의 방사성 폐기물 처분용 고화제로의 활용을 위한 고화체 특성 평가

## Characteristics Evaluation of Solidifying Agent for Disposal of Radioactive Wastes Using Waste Concrete Powder

서은아<sup>1\*</sup> · 이호재<sup>2</sup> · 권기현<sup>2</sup> · 김도겸<sup>3</sup>

Eun-A Seo<sup>1\*</sup> · Ho-Jae Lee<sup>2</sup> · Ki-Hyon Kwon<sup>2</sup> · Do-Gyeum Kim<sup>3</sup>

(Received September 28, 2021 / Revised November 15, 2021 / Accepted November 16, 2021)

The purpose of this study is to evaluate the performance of a solidifying agent for recycling the fine powder separated from the nuclear power plant decommissioned concrete as a solidifying agent(SA) for radioactive waste. In order to evaluate the performance of the solidifying agent, a powder simulating the fine powder of waste concrete separated from the dismantled concrete of a nuclear power plant was produced, and the main variables were the type of binder and the replacement ratio of zeolite. The solidifying agent was evaluated for fluidity performance, compressive strength, and leaching resistance to non-radioactive cesium. The compressive strength of SA increased as the zeolite replacement ratio increased, and the SA containing 5% or more of zeolite showed a compressive strength that was 1.4 to 1.7 times higher than the acceptance criteria. The cesium leaching index of all specimens was 6 or higher, satisfying the acceptance criteria, and the leaching index of SA was 1.47~1.63 times higher than that of OPC. In particular, the average leaching index after 28 days of the 5% zeolite-substituted solidifying agent was 9.15, which was improved by about 6.4% compared to OPC, and it was confirmed that the zeolite was effective in improving the leaching resistance to cesium ions by showing stable performance over the entire period.

**키워드** : 폐콘크리트, 방사화 콘크리트, 재활용, 고화제, 제올라이트, 세슘

**Keywords** : Waste concrete, Radioactive concrete, Recycling, Solidifying agent, Zeolite, Cesium

## 1. 서론

전 세계적으로 운영되고 있는 원자력 발전소는 2021년 4월 기준으로 444기이며, 현재까지 폐쇄된 원자로는 총 192기이다(World Nuclear Power Market INSIGHT 2021). 전 세계 원전의 평균 가동년 수는 31.1년으로 전반적으로 노후화가 진행되고 있으며, 이에 따라 원전 해체 시장이 확대되고 있다. 국내에서는 최초의 상업용 원전인 고리 1호기가 2017년 6월에 정지되었으며, 2019년 12월에 월성 1호기가 정지되어 원전해체 시장이 점차 확대될 것으로 예상되고 있다. 이에 따라 원전해체 기술과 해체 폐기물의 처리기술 개발에 대한 필

요성이 증대되고 있다. 원자력 발전소는 대부분 철근 콘크리트 구조물로 구성되어있기 때문에 해체 시 발생하는 콘크리트 폐기물량이 전체 폐기물 부피의 약 70% 이상을 차지한다(Sasaki et al, 2009). 원전해체 사업에서는 폐기물 처리비용이 전체의 40% 이상을 차지하며, 가장 큰 비중을 차지하는 것이 콘크리트 폐기물 처리비용이다.

원전해체 콘크리트 폐기물은 일반 콘크리트 폐기물과 다르게 콘크리트가 방사능에 오염되기 때문에 방사능 오염정도에 따라 규정된 방법에 따라 폐기되는 특수 폐기물로 구분된다. 국내의 경우, 방사성 폐기물의 처리량의 한계와 지속적인 비용 발생을 감안하면 방사성폐기물의 부피 감소와 미오염된 폐기물을 분리하고

\* Corresponding author E-mail: sea0524@kict.re.kr

<sup>1</sup>한국건설기술연구원 구조연구본부 전임연구원 (Department of Structural Engineering Research, Korea Institute of Civil engineering and Building technology, Kyonggi-do, 10223, Korea)

<sup>2</sup>한국건설기술연구원 구조연구본부 수석연구원 (Department of Structural Engineering Research, Korea Institute of Civil engineering and Building technology, Kyonggi-do, 10223, Korea)

<sup>3</sup>한국건설기술연구원 구조연구본부 선임연구위원 (Department of Structural Engineering Research, Korea Institute of Civil engineering and Building technology, Kyonggi-do, 10223, Korea)

재활용하여 폐기물 처리비용 절감을 위한 규제와 기술 검토가 필수적이다. 하지만 국내에서는 공릉동 연구용 원자로 해체 경험이 있지만 상용 원전의 해체 후 발생하는 방사화 콘크리트에 대한 감용 및 재활용 기술개발은 아직까지 미흡한 실정이다. 일반적으로 방사화 콘크리트는 대부분 시멘트 페이스트에 포함된 코발트(Cobalt, Co), 유퀴륨(Europium, Eu) 등의 물질이 원자로에서 발생하는 중성자로 인하여 방사화되며, 상대적으로 밀도가 높은 골재는 비방사화 상태이거나 자체치분 이하로 구분이 가능하다(Seo et al. 2021; Kim et al., 2020a; Kim et al. 2021). 실제 원전 해체 시, 방사성 폐기물 50만톤 중에 유의 수준의 폐기물은 2% 내외이며, 안전범위를 고려하더라도 상당부분의 폐기물이 재활용 가능할 것으로 예상되고 있다.

이에 따라 방사화 콘크리트 덩어리를 파쇄하여 골재와 방사화 페이스트 분말로 분리한 후, 분리된 폐콘크리트 분말을 가공하여 중·저준위 방사성 폐기물용 고화제로 재활용할 수 있다(Seo et al. 2021; Kim et al. 2020a; Kim et al. 2021). 일반적으로 분리된 방사화 콘크리트 미분말은 고화처리하여 폐기처분되지만 이를 다른 형태의 폐기물의 고화처리에 재활용함에 따라 경제성 및 환경 기여도를 확보할 수 있다. 특히, 방사성 폐기물용 고화제의 압축강도 인수기준은 3.45MPa(500psi) 이상으로 목표성능이 비교적 낮기 때문에 폐콘크리트 분말을 방사성 폐기물용 고화제로의 재활용 가능성이 높을 것으로 판단된다(Kot'áková et al. 2017).

이 연구의 목적은 원전 해체 콘크리트에서 분리된 폐콘크리트 미분말을 고화제 적용하기 위한 성능을 평가하는 것이다. 사용된 폐콘크리트 미분말은 실제 방사화 콘크리트를 사용할 경우, 방사성 물질에 의한 위험성이 높아 모사시료를 제작하여 실험을 수행하였다. 고화제의 성능평가는 폐콘크리트 미분말 모사시료와 보통포틀랜드시멘트(ordinary portland cement, OPC)에 대하여 세슘(Cesium, Cs) 이온 고정화 성능향상 물질 혼입율의 영향을 평가하였다. 고화제 특성은 유동성과 압축강도 및 활성화 지수를 평가하였으며, 방사성 세슘과 유사한 화학적 거동을 보이는 비방사성 세슘을 활용하여 세슘에 대한 고화제의 압축강도 및 침출 저항성을 평가하였다.

## 2. 실험개요

### 2.1 실험재료

#### 2.1.1 폐콘크리트 시료

원전해체 콘크리트에서 분리된 폐콘크리트 미분말(waste concrete powders, WCP)을 모사한 시료(solidifying agent, SA)

를 제작하기 위하여 Table 1과 같은 물-결합재비 62.1% 및 잔골재율 45%의 1종 보통 포틀랜드 시멘트(ordinary portland cement, OPC)와 19mm 굵은 골재, ISO 표준사를 사용한 원전 콘크리트 시험체를 제작하였다(Yoon et al. 2006; Cho et al. 2002). 제작한 원전용 콘크리트 시험체는 재령 91일 동안 기건양생한 후 Table 2와 같은 공정을 통하여 페페이스트 미분말을 분리하였다.

WCP에 대한 화학적 조성 분석결과, CaO와 SiO<sub>2</sub> 함량이 각각 46.43%, 25.26%로 가장 높게 나타났다(Table 3). WCP에서 SiO<sub>2</sub> 함량이 높게 나타난 이유는 분리과정 중에 골재표면이 마모되면서 발생한 다량의 골재 미분말이 혼합되기 때문이다. WCP를 고화제로 재활용하는데 있어서 고화제 성능에 가장 큰 영향 요인은 골재 미분말 혼입량이며, 혼입량이 증가될수록 고화제의 내구성 확보가 어려운 문제점이 있다. 이에 따라 폐콘크리트 미분말 모사시료는 CaO와 SiO<sub>2</sub> 성분을 기준으로 결정하였으며, 보수적인 성능평가를 위하여 폐콘크리트 미분말 모사시료의 골재 미분말 혼입량을 50%로 설정하였다(Mun et al. 2017).

Table 1. Typical mixture proportions of concrete for nuclear power plant

Type	Strength (psi)	W/B (%)	S/a (%)	Unit contents(kg/m <sup>3</sup> )			
				Water	Cement	Fine aggregate	Coarse aggregate
Concrete	3,000	62	45	165	265	806	983

Table 2. Manufacturing process of WCP

Step	Process
1	Concrete prepared with W/B=62.1%, S/a=45% is cured for 3 months at air-dried condition.
2	The concrete specimen is crushed using a jaw crusher.
3	The crushed concrete mass with a particle size of 4.75mm or more were calcined for 2 hours under maximum temperature of 600°C elevated at heating rate of 10°C/min.
4	The heat-treated concrete mass is separated from the aggregate and paste using a ball mill(350rpm, 2hr).
5	After the ball mill process is completed, the sample is separated into aggregate and waste paste fine powder through a sieve.

#### 2.1.2 고화제 시료

WCP를 모사한 SA시료는 페페이스트 분말과 골재 미분말을 1:1의 비율로 혼입하여 제작하였다. 페페이스트 분말은 시멘트 페이스트 시험체(W/B 60%)를 제작하여 재령 91일 동안 기건양생한 후 조크러셔(jaw crusher)와 블레이드 밀(blade mill)을 이용하여 150 μm이하로 제조하였다. 골재 미분말은 ISO 표준사를 블레이드 밀

Table 3. Density and chemical compositions of materials

Materials	Physical properties	Chemical composition(wt. %)								
	Density (g/cm <sup>3</sup> )	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MgO	SO <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O
OPC	3.14	17.25	4.75	58.26	3.25	2.62	3.34	0.29	0.25	1.13
WCP	2.89	25.26	3.62	46.43	2.21	1.79	1.70	0.22	0.14	0.92
SA	2.6	32.92	3.77	43.82	2.26	1.93	2.10	0.22	0.13	0.84

로 200μm이하로 분쇄하여 제조하였다.

SA시료는 재수화 특성 분석을 위하여 승온온도 10°C/min, 최고 온도 600°C의 환경에서 2시간 동안 소성하였다. 고화제로 활용하기 위한 페페이스트의 소성 온도가 700°C 이상인 경우, 다량의 CaO로 인하여 유동성의 저하 및 높은 초기 수화열이 발생하기 때문에 안정적인 고화제로의 활용을 위하여 초기 수화열이 낮으면서 압축강도 확보에 유리한 600°C로 설정하였다(Mun et al, 2017).

2.1.3 고정화 성능 향상 재료 선정

중·저준위 방사성 폐기물 처분용 고화제는 일반적인 재생시멘트와 달리 방사성 폐기물에 적용됨에 따라 방사성 폐기물에 포함된 방사성 핵종의 고정화 성능 확보가 필수적이다. 이에 따라 이 연구에서는 방사성 핵종의 고정화 성능 향상을 위한 혼화재료로 합성 제올라이트를 선정하였다. 합성 제올라이트는 다양한 종류가 있으며, 대표적으로 Fig. 1과 같이 내부 구조에 따라 4-ring구조의 A type과 6-ring 구조의 X type이 있다(Kim et al, 2020b). 이 연구에서는 4-ring 구조인 Linde Type A(LTA) 제올라이트(Si/Al=1)를 사용하였다. 이는 4개의 O가 Si와 Al 원자를 둘러싸고 있는 정사면체 결정구조이며, 공동 내의 Cs 고정성능이 우수한 장점이 있다(Kim et al, 2017). 사용된 제올라이트의 내부 기공 크기는 5Å이며, 화학적 성분분석결과 Table 4에 나타내었다.

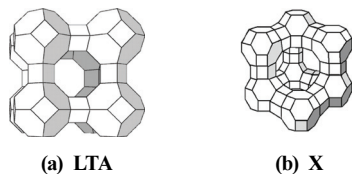


Fig. 1. Zeolite type

Table 4. Chemical compositions of Zeolite(wt, %)

SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	Na <sub>2</sub> O	SrO	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MgO	K <sub>2</sub> O	SO <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>
38.84	36.84	16.26	3.97	0.10	0.04	0.14	0.11	0.01	0.01

2.2 실험 계획 및 방법

이 연구에서는 원전 폐콘크리트의 재수화 특성을 분석하기 위하여 OPC와 고화제 모사사료(SA)에 비방사성 핵종을 이용한 방사성 폐기물 고화제 특성평가를 수행하였다.

2.2.1 고화제 배합설계 및 압축강도 측정

고화제의 특성평가를 위하여 결합재를 OPC와 SA를 사용한 페이스트 시험체를 제작하였으며, 배합상세는 Table 5와 같다. Group 1은 결합재를 OPC로, Group 2는 결합재를 SA로 사용한 배합으로 고화제 고정화 성능향상 물질인 제올라이트의 혼합비율에 따라 각 3가지 배합을 수행하였다. 모든 시험체는 물리적 및 화학적 특성 평가와 압축강도 평가를 수행하였다. KS L 5111(2017) (수경성 시멘트 시험용 플로테이블)을 이용, Table flow test를 수행하여 유동성을 평가하였으며, 압축강도는 KS L 5105(2007)에 따라 채령 3, 7, 28일 측정하였으며, 항온항습환경(온도 20±2°C, 습도 60±5%)에서 양생된 Φ100×200mm의 원주형 시험체를 이용하였다.

2.2.2 재수화 특성 평가

폐콘크리트에서 분리된 분말을 방사성 폐기물 처분용 고화제로 재활용하기 위해서 OPC와 SA의 성능비교를 수행하였다. 방사성 폐기물 처분용 고화제는 폐기물과의 원활한 교반 및 충전성 확보를 위한 유동성능과 폐기물의 고정화 성능을 필수적으로 확보되어

Table 5. Mix composition of solidifying agent

Group	Specimen	W/B (%)	Water	Biner(%)		
				OPC	SA	Zeolite
I	OPC	40	Di water	100	-	-
	OPC-Z5			95	-	5
	OPC-Z10			90	-	10
II	SA			-	100	0
	SA-Z5			-	95	5
	SA-Z10			-	90	10

야한다. 이에 따라 재수화된 모사시료의 유동성과 압축강도를 OPC 시험체와 비교하였다. 재수화 특성평가는 플라이애쉬 품질 성능검증을 위해 사용되는 활성도 지수 평가방법(KS L 5405, 2018)을 근거로 하여 고화제 페이스트 의 플로우 비와 강도 발현 수준을 평가하였다. 이 연구에서는 기존의 활성도 지수 평가방법과 다르게 모르타르 배합이 아닌 페이스트 배합으로  $\varnothing 100 \times 200 \text{mm}$  의 원주형 시험체를 이용하여 재령 3, 7, 14, 28일 압축강도를 측정 하였다. 활성도 지수( $A$ )와 플로우비( $F$ )는 식 (1)과 식 (2)와 같이 나타내었다.

$$A = \frac{c_2}{c_1} \times 100 \quad (1)$$

여기서,  $A$ 는 활성도지수(%),  $c_1$ 는 각 재령에서 기준 페이스트 시험체의 압축강도 평균 값(MPa),  $c_2$ 는 각 재령에서 SA를 혼합한 페이스트 시험체의 압축강도 평균 값(MPa)이다.

$$F = \frac{l_2}{l_1} \times 100 \quad (2)$$

여기서,  $F$ 는 플로우 비(%),  $l_1$ 는 OPC 페이스트의 플로우 값 (mm),  $l_2$ 는 SA 페이스트의 플로우 값(mm)이다.

### 2.2.3 비방사성 핵종을 이용한 방사성 폐기물 고화체 특성평가

방사성 폐기물 처분용 고화제의 인수기준과 성능평가 방법은 Table 6에 나타내었다. 이 연구에서는 고화제의 주요 인수기준인 재령 28일 압축강도 500psi(3.45MPa) 이상, 침출지수 6 이상 확보에 대하여 성능평가를 수행하였다. 방사성 폐기물 처분용 고화제의 성능평가 시 방사성 핵종의 사용은 현실적으로 어려움이 있어서 방사성 원소와 동일한 화학적 거동을 보이는 비방사성 원소를 활용하였다. 핵종은 방사성 유무와 관계없이 화학적 거동이 유사하기 때문에 비방사성 물질의 배합수를 적용한 고화제의 압축강도 평가로 방사성 물질에 대한 고화제의 압축강도 성능을 검토하였다 (Kim et al. 2021). 사용된 비방사성 물질은 염화세슘(Cesium chloride, CsCl)이며, 보수적인 평가를 위하여 고농도의 포화상태인 3mol 수용액으로 제조하여 배합수로 사용하였다. 침출지수 평가를 위한 고화체 침출실험은 EPA 1315를 기준으로 수행하였으며, 증류수에 시험체( $\varnothing 15 \times 30 \text{mm}$ )를 침지시킨 후 2시간, 1, 2, 7, 14, 28, 42, 49, 63일의 간격으로 침출수를 교체하였다. 회수된 침출수는 ICP-MS를 이용하여 Cs의 침출량을 측정하였으며, 식 (3)

Table 6. Performance evaluation criteria

Specimen conditions		Criteria	
Compressive strength	As prepared	ASTM C39 (28day cure)	$\geq 500 \text{psi}$
	Thermal cycle	ASTM B553 ASTM C39	$\geq 500 \text{psi}$
	After immersion	ASTM C39 (90day cure)	$\geq 500 \text{psi}$
Leach index(Cs)		EPA 1315	$\geq \text{LI } 6$

~(4)을 통하여 침출지수를 산정하였다.

$$D_e = \pi \left[ \frac{A_n/A_0}{(\Delta t)_n} \right]^2 \left( \frac{V}{S} \right)^2 T \quad (3)$$

여기서,  $A_n$ 은 침출수 간격동안 유출된 물질 A의 누적 침출량 (g),  $A_0$ 는 시험체에 있는 물질 A의 초기 함유량(g),  $D_e$ 는 유효확산 계수( $\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$ ),  $V$ 는 시험체의 체적( $\text{cm}^3$ ),  $S$ 는 시험체의 표면적 ( $\text{cm}^2$ ),  $T$ 는  $n$ 번째 침출구간의 평균시간이며, 식 (3)을 통하여 산출된 유효확산계수를 식 (4)에 대입하여 침출지수를 결정하였다.

$$LI = -\log D_e \quad (4)$$

비방사성 CsCl 3mol 수용액을 배합수로 사용한 고화체의 배합 설계는 고정화 성능향상 물질의 혼입비율에 따라 Table 7과 같으며, 압축강도는 재령 7, 28, 91일에 측정하였다. 방사성 폐기물용 고화제는 제올라이트와 같은 고정화 성능향상 물질의 혼입율이 높아지면 그만큼 처분용기에 투입될 수 있는 폐기물의 양이 적어지는 문제가 있다. 이에 따라 비방사성 핵종을 이용한 방사성 폐기물 고화체 특성평가에서는 제올라이트 혼입율을 5%로 설정하였다.

Table 7. Specimen details for solidified container materials

Specimen	W/B (%)	Water	Biner(%)		
			OPC	SA	Zeolite
OPC-Cs	50	CsCl 3mol	100	-	-
SA-Cs			-	100	0
SA-Z5-Cs			-	95	5

## 3. 실험결과 및 분석

### 3.1 유동성

Di water를 배합수로 사용한 OPC와 SA의 유동성 측정 결과를

Table 8에 나타내었다. OPC Group의 유동성은 실험변수와 관계 없이 모든 시험체에서 250mm 이상으로 측정되어 유동성이 매우 높은 것으로 나타났다. SA Group의 유동성은 185.49~240mm의 범위로 나타났으며, SA가 184.22mm로 가장 낮게 나타났다. SA-Z5와 SA-Z10의 플로우는 230mm와 240mm로 SA의 플로우 대비 각각 1.24배, 1.3배 높은 유동성을 보였다. SA Group의 플로우 비는 동일한 배합의 OPC 시험체 대비 SA 시험체의 플로우로 산정하였다.

Table 8. Flow test results

Group	Specimen	Flow (mm)	Flow ratio
I	OPC	250	-
	OPC-Z5	250	
	OPC-Z10	250	
II	SA	184	0.74
	SA-Z5	230	0.92
	SA-Z10	240	0.96

SA의 플로우는 0.74로 OPC 대비 유동능력이 낮게 나타났다. 반면, 제올라이트 5% 이상 혼입할 경우, OPC 플로우 대비 플로우 저감비율은 약 4~8%에 불과하여 OPC와 유사한 유동성을 확보하였다. 결과적으로 고화제에서는 제올라이트의 혼입율이 높아질수록 유동성이 향상되었다. 사용된 제올라이트는 입자가 구형이고, 2.5~3.5 $\mu$ m의 균등한 입경을 가지고 있어 제올라이트를 혼입함에 따라 볼베어링 작용으로 유동성이 향상된 것으로 판단된다.

### 3.2 압축강도

제올라이트 혼입율에 따른 OPC와 SA의 재령 별 압축강도는 Fig. 2에 나타내었으며, 배합수는 Di water를 사용하였다. OPC Group의 재령 28일 강도는 26~31MPa의 범위로 방사성 폐기물용 고화제의 압축강도 인수기준인 3.45MPa를 상회하는 성능을 나타내었다. OPC 배합에서는 제올라이트 치환율이 증가함에 따라 압축강도가 저하되는 경향을 나타내었다. OPC-Z5와 OPC-Z10의 재령 28일 강도는 OPC 대비 각각 3.2%와 13.26% 낮게 나타났다. 이는 페이스트 배합에서 시멘트의 강도증진 성능이 제올라이트 보다 높기 때문에 동일한 결합재량에서 제올라이트 치환율이 증가함에 따라 시멘트의 양이 적기 때문에 강도가 낮아지는 것으로 판단된다.

SA Group의 28일 압축강도는 2.58~5.98MPa의 범위로 나타났으며, SA 시험체는 고화제 인수기준 강도(3.45MPa)를 만족하지 못하였다. 반면에 SA-Z5와 SA-Z10의 재령 28일 압축강도는 고화

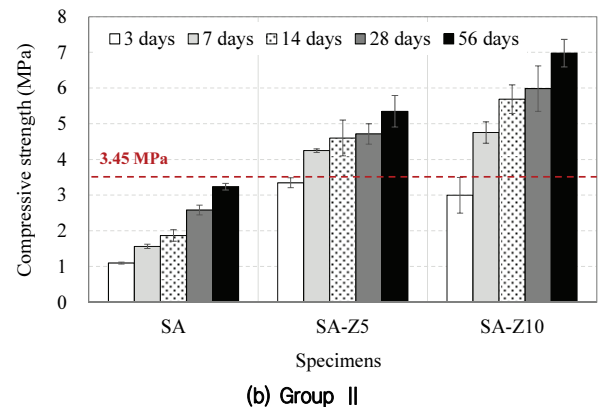
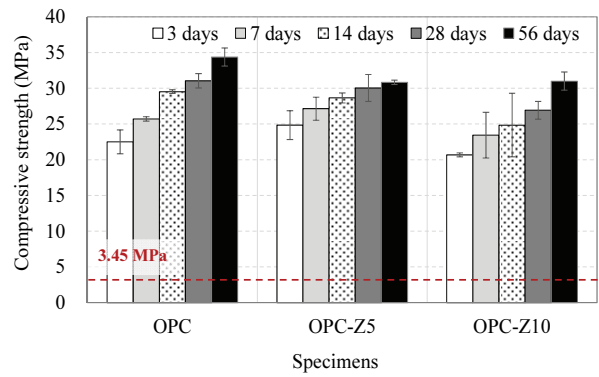


Fig. 2. Compressive strength

제 인수기준을 만족하였으며, SA와 비교하여 각각 1.8배, 2.3배 향상되었다. SA 배합에서는 OPC 배합과 반대되는 경향으로 제올라이트 치환율이 증가됨에 따라 압축강도가 증가하였다. SA 분말은 폐콘크리트에서 분리된 미분말을 모사한 시료로 페페이스트와 골재 미분말이 1:1로 혼입된 시료이기 때문에 OPC와 비교하여 수화물의 양이 적은 단점이 있다.

일반적으로 제올라이트를 콘크리트 배합에 적용한 경우, 제올라이트는 시멘트의 결합력을 증대시키기 보다는 골재와 골재 사이의 결합력을 증대시키는 역할을 한다(Jo and Choi 2012). 이에 따라 SA 배합에서 제올라이트는 SA에 포함된 잔골재 입자 사이의 결합력을 증대시켜 압축강도를 증진시키는 것으로 판단된다. 이와 같이 SA-Z5의 압축강도가 SA-Z10보다 낮은 이유는 결합재 내의 골재 미분말 혼입량 대비 제올라이트 분말량이 작기 때문에 골재 간의 결합능력이 약화된 것으로 판단된다.

Fig. 3에는 각각의 Group에서 제올라이트가 혼입되지 않은 기준 배합 시험체(SA, OPC) 대비 제올라이트가 혼입된 시험체의 압축강도의 비율을 나타내었다. 예를 들어 OPC-Z5의 압축 강도비

는 OPC-Z5의 압축강도를 동일한 재령의 OPC 시험체의 압축강도로 나누어 산정하였으며, SA Group도 SA 시험체의 압축강도를 기준으로 동일한 방법으로 시험체별 압축강도 비를 산정하였다. OPC-Z5와 OPC-Z10의 압축강도비는 0.84~1.10의 범위로 나타났으며, 제올라이트의 혼입율과 재령에 따른 영향은 미미였다. 반면, SA Group의 평균 압축강도비는 2.5로 나타났으며, 제올라이트 치환율이 높아짐에 따라 압축강도비가 높았다.

특히, 초기 재령에서 제올라이트 혼입에 따른 강도 증진 효과가 현저히 높았으며, 재령 28일을 기준으로 수렴하는 경향을 나타내었다. Fig. 4에는 변수에 따른 압축강도 발현률을 나타내었다. OPC Group의 재령 3일 강도발현률은 70% 이상으로 SA Group과 비교하여 초기 압축강도 발현률이 현저히 높게 나타났으며, OPC 배합에서는 제올라이트 치환율과 재령에 따른 강도발현률의 영향은 미미하였다. 제올라이트가 혼입되지 않은 SA의 재령 28일 강도 대비 7일의 강도발현률은 60%로 비교적 낮았으며, 제올라이트 혼입 시험체의 재령 7일 강도발현률은 80% 이상을 나타내었다. 따라서 폐콘크리트 미분말을 방사성 폐기물 고화제로 재활용할 경우, 초기강도 확보를 위해서는 제올라이트 혼입이 효과적인 것으로 확인되었다.

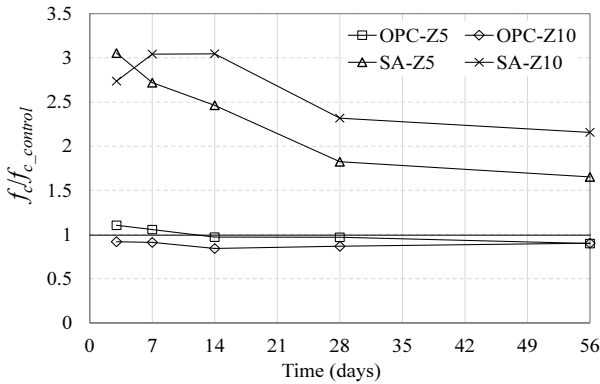


Fig. 3. Ratio of compressive strength to reference specimen

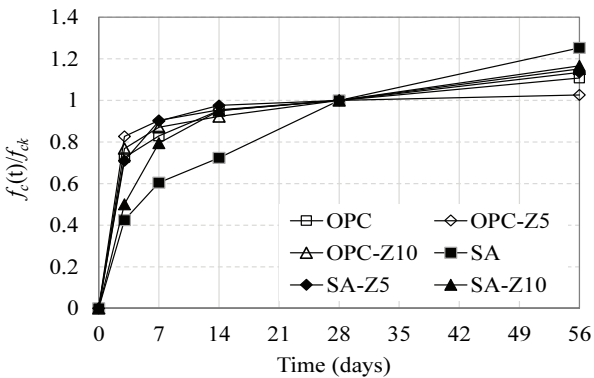


Fig. 4. Compressive strength development

### 3.3 활성화 지수

SA 시험체의 재령에 따른 활성화 지수는 Fig. 5와 같다. SA의 활성화 지수는 5~10%의 범위로 비교적 낮았으며, 제올라이트 혼입율이 증가됨에 따라 활성화 지수가 향상되는 경향을 나타내었다. SA-Z5의 재령에 따른 활성화 지수는 약 15%로 산정되었으며, SA와 비교하여 평균적으로 약 2.3배 높게 나타났다. SA-Z10의 활성화 지수는 재령 3일과 7일에서 각각 14.49%와 20.29%로 SA 대비 약 3~3.3배 높게 나타났다. 재령 28일의 활성화 지수는 SA는 8.32%이며, SA-Z5와 SA-Z10은 각각 15.69%와 22.23%로 나타났다.

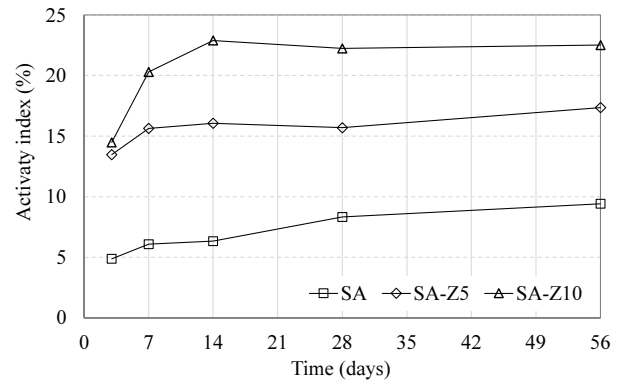


Fig. 5. Activity index of solidifying agent

KS F 5405(2018)에서는 플라이애시(4종)의 활성화 지수를 60% 이상으로 제시하고 있으며, SA 배합의 활성화 지수는 25% 이하로 비교적 낮다. 하지만 방사성 폐기물용 고화제는 높은 압축강도 성능이 요구되지 않기 때문에 인수기준인 압축강도 3.45MPa를 만족하는 범위에서는 폐콘크리트 미분말을 고화제로 재활용하는 것이 가능할 것으로 판단된다. 또한 폐콘크리트 미분말의 고화제로의 재활용 가능성에 대한 보수적인 검토를 위하여 폐콘크리트 미분말 내 골재 미분말 혼입율을 50%로 실험을 수행하였다. 하지만 폐콘크리트에서 골재를 분리하는 공정의 종류와 시간에 따라 분리된 폐콘크리트 미분말 내의 골재 혼입량을 저감시킬 수 있으며, 골재 혼입량의 점감을 통하여 SA의 활성화 지수의 향상이 가능할 것으로 판단된다.

### 3.4 비방성 물질을 활용한 방사성 폐기물용 고화제 성능평가

#### 3.4.1 압축강도

방사성 폐기물용 고화제의 인수기준 성능 검증을 위해서 CsCl

3mol 용액을 배합수로 사용한 시험체의 압축강도 측정결과를 Fig. 6에 나타내었다. OPC-Cs의 재령 28일 압축강도는 24.37MPa로 측정되어 고화제 인수기준 강도를 만족하였다. 또한 재령 91일 압축강도는 28일 대비 1.5배 높게 나타나 장기강도 발현능력이 높았다. SA-Cs의 재령 28일 압축강도는 3.02MPa로 일반 배합수를 사용한 시험과 동일하게 고화제 인수기준 강도를 만족하지 못하였다. 하지만 폐콘크리트 미분말내의 골재 미분말 혼입율을 50% 미만으로 조절하여 미분말을 제조하는 경우에는 고화제 압축강도 성능기준을 만족할 수 있을 것으로 판단된다.

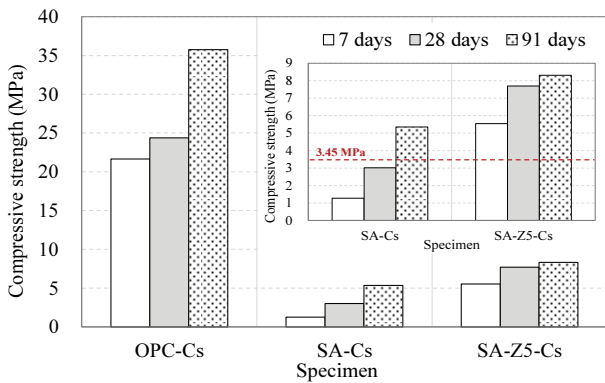


Fig. 6. Compressive strength

반면에 SA-Z5-Cs의 재령 7일과 재령 28일의 압축강도는 각각 5.54MPa와 7.7MPa로 인수기준 성능을 충분히 확보하였다. 특히, 재령 7일에서도 인수기준 강도 이상의 성능을 확보하여 초기 재령의 안전성을 확보할 수 있었으며, 재령 28일 강도는 기준 강도 대비 약 2.2배 높은 성능을 나타내었다. 하지만 SA-Z5-Cs는 28일 강도발현 이후 91일까지 강도 증진은 거의 일어나지 않은 것으로 평가되는데, 이는 배합내 공극수를 비롯한 잉여수의 흡수로 인해 장기적인 수화반응에 방해요소로 작용했기 때문으로 판단된다.

### 3.4.2 세슘 이온 침출 저항성능 평가

고화제의 침출지수 평가를 위하여 EPA 1315를 기반으로 침출 실험을 수행하였으며, 침출수의 재령에 따른 세슘이온 농도와 산정된 침출지수는 Fig. 7과 Fig. 8에 나타내었다. 모든 시험체의 침출수의 세슘 이온농도는 약 7일까지는 침출량이 증가되는 경향을 나타내었으며, SA의 침출량이 가장 높게 나타났다. 모든 시험체의 침출기간동안 세슘 이온 최대 침출량은 700~1668ppm으로 높은 수치로 측정되었지만, 이는 침출 시험체 제작 시 배합수를 과포화 된 CsCl 3mol 수용액을 사용하였기 때문에 상대적으로 침출량이

높게 나타난 것으로 판단된다. 또한 모든 시험체는 14일을 기점으로 세슘 이온 침출량이 안정적으로 낮아지는 경향을 나타내었으며, 29일 이후의 침출량의 미미한 수준이었다.

각 시험체의 침출 저항성능은 혼입된 세슘 이온량 대비 침출시간에 따른 세슘 이온의 침출율을 산정하는 침출지수를 통하여 평가할 수 있으며, 값이 높을수록 침출 저항성능이 높은 것을 뜻한다. 63일 동안의 침출 실험결과, 모든 시험체의 Cs에 대한 침출지수는 전 기간동안 인수기준인 6 이상을 만족하였다. OPC-Cs의 초기 침출기간(2일 이내)에서 평균 침출지수는 8.43이었으며, 재령 28일 이후의 평균 침출지수는 8.86으로 침출지수가 가장 낮게 나타났다. 반면에 SA-Cs의 침출 2일 이내의 평균 침출지수는 7.37로 비교적 낮게 나타났지만 재령 28일이후의 평균 침출 지수는 13.79

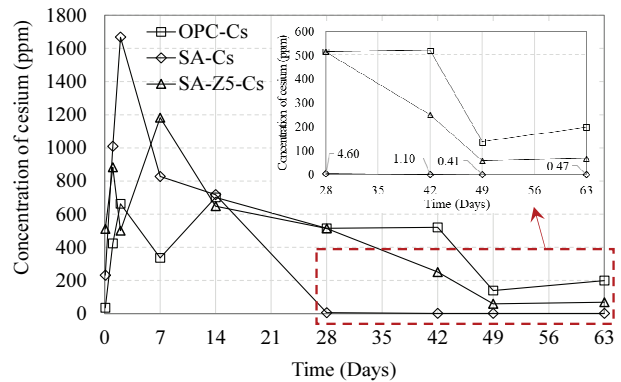


Fig. 7. Analysis of cesium concentration with a leaching time

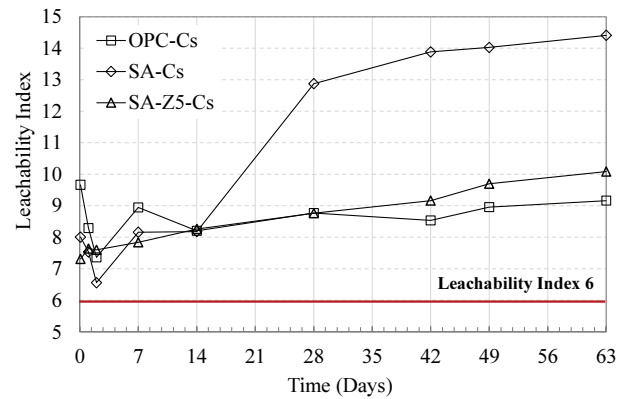


Fig. 8. Leachability index

Table 9. Results from N<sub>2</sub> gas adsorption(BET)

Specimens	S <sub>ABET</sub> (m <sup>2</sup> /g)	Pore size (Å)
OPC	1.2189	196.2565
SA powder	6.1345	43.017



로 장기 침출에 대한 저항성능이 현저히 높은 것으로 나타났다. SA-Cs의 침출 지수는 14일 이후부터 OPC-Cs의 침출 지수를 넘어섰으며, 재령 63일의 침출지수는 OPC-Cs 대비 약 1.6배 높게 나타나 장기 재령에서의 침출 저항성능이 현저히 높은 것을 확인할 수 있었다. SA 배합은 OPC 배합과 비교하여 현저히 낮은 압축 강도를 나타내었지만 14일 이후의 침출저항성능은 1.47~1.63배 높았다.

SA의 경우, 콘크리트에서 분리된 후 재수화를 위한 소성공정이 적용되며, 이 과정에서 C-S-H 구조체의 탈수로 인한 다량의 미세 공극이 생성되어 비표면적이 현저히 증가하는 특징이 있다(Kim et al., 2021). 미세공극의 분포를 확인하기 위해 BET 분석 (Micromeritics Instrument Corporation, TriStar II 3020 Version 3.01)을 통하여 OPC와 SA 분말에 대하여 비표면적과 공극 크기를 측정된 결과를 Table 9에 나타내었다. SA의 비표면적은  $6.13\text{m}^2/\text{g}$ 이며, OPC의 비표면적은  $1.22\text{m}^2/\text{g}$ 으로 측정되었다. SA의 비표면적은 OPC와 비교하여 약 5배 높았으며, 공극 크기는 OPC 대비 88% 낮아 다량의 미세공극을 가진 결합재임을 확인하였다. 결과적으로, SA 시험체에서는 수용액 내부에 존재하는 세슘 이온이 SA 내부의 공극에 흡착되고, 수화반응을 통해 세슘이온을 감싸서 고정화하여 유출을 억제하는 것으로 판단된다.

SA-Z5-Cs의 초기 재령 침출 평균은 7.58이었으며, 재령 28일 이후의 평균 침출지수는 9.15로 OPC-Cs 대비 약 6.4% 향상되고 SA-Cs 대비 약 32% 낮은 것으로 나타났다. 하지만 SA-Z5-Cs는 OPC 및 SA와 다르게 침출지수가 초기부터 63일까지의 큰 변화 없이 계속적으로 증가하는 경향을 나타내어 세슘 침출에 대한 안정적인 저항성능을 확보함을 확인하였다. 특히, 2일까지의 초기 침출에 대해서 OPC와 SA는 계속적으로 저하되는 경향을 나타내었지만 SA-Z5-Cs에서는 초기의 급격한 세슘 이온의 침출이 나타나지 않았다. 결과적으로 SA-Z5-Cs는 침출 전 기간동안 가장 안정적인 침출 저항성을 나타내었으며, 14일 이후부터는 OPC와 동등 이상의 침출 저항성능을 확보함을 확인하였다. 이는 제올라이트의 내부 공동 내에 세슘이 흡착되어 세슘의 침출 저항성이 증진된 것으로 판단된다.

#### 4. 결론

본 연구에서는 원전해체 콘크리트에서 분리된 폐미분말을 방사성 폐기물 처분용 고화제로 재활용하기 위하여 고화제의 인수기준에 대한 기초연구를 수행하였다. 원전해체 콘크리트에서 분리된 폐미분말을 모사한 고화제를 사용하여 유동성과 압축강도 및 비방

사성 세슘을 이용한 침출 저항성능 평가를 수행하였으며, 다음과 같은 결론은 얻었다.

1. SA 배합의 유동성은 OPC 배합 대비 약 74% 수준으로 낮게 나타났으며, 제올라이트의 혼입율이 높아질수록 유동성이 향상되었다.
2. 고화제의 압축강도는 제올라이트 혼입율이 증가함에 따라 증가하였으며, 제올라이트가 5% 이상 혼입될 경우 고화제 인수기준 대비 1.4~1.7배 높은 압축강도를 나타내었다.
3. 고화제의 재령 3일 압축강도 발현율은 71% 미만으로 비교적 낮게 나타났지만, 제올라이트 혼입에 따른 조기강도 향상 효과를 확인하였다.
4. SA-Cs, SA-Z5-Cs 배합의 압축강도 평가결과, SA-Z5-Cs 시험체는 재령 28일에 인수기준 대비 약 2.2배 높은 강도를 확보하였다.
5. 비방사성 세슘이온에 대한 고화제의 침출성능평가결과, OPC 배합과 SA-Z5-Cs 배합은 침출기간 2일 이내에서 세슘이온이 급격하게 침출되는 경향이 나타났으나 침출지수는 6 이상을 나타내 인수기준은 충족하였다.
6. 모든 시험체의 세슘이온에 대한 침출지수는 6 이상으로 인수기준을 만족하였으며, 고화제의 침출지수는 OPC와 비교하여 장기 침출저항성이 1.63배 높은 수준이었다.
7. 제올라이트의 혼입한 고화제의 침출지수는 전 기간 동안 큰 변동없는 안정적인 성능을 나타내어 제올라이트가 세슘이온에 대한 침출저항성 향상에 효과적임을 확인하였다.

#### Conflicts of interest

None.

#### 감사의 글

본 연구는 산업통상자원부(MOTIE)와 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다(No. 20203210100150).

#### References

Ahn, J.C. Oh, S.G., Kang, B.H. (2005). Hydraulic properties of the recycled cement made of by-product cementitious powder from concrete waste, Journal of the Architectural Institute of Korea



- Structure & Construction, **21(9)**, 121–128 [in Korean].
- Ahn, J.W., Kim, H.S., Cho, J., Han, G.C., Han, K.S., Kim, H. (2003). Manufacture of ordinary Portland cement clinker using cement paste of the waste concrete, Journal of the Korean Ceramic Society, **40(8)**, 804–810 [in Korean].
- Cho, M.S., Song, Y.C., Kim, S.W., Koh, K.T. (2002). Evaluation of the suitability for concrete using fly ash in N,P,P. structures, Proceedings of the Korean Nuclear Society Conference, **34(37)**, 411 [in Korean].
- Jo, B.W., Choi, J.S. (2012). An experimental study on the fundamental properties of zeolite concrete, Journal of The Korea Institute for Structural Maintenance and Inspection, **16(1)**, 1–8.
- Kim, D.G., Yang, K.H., Seo, E.A., Yoon, H.S. (2020a). Evaluation on the physical properties and paste adhesion of recycled coarse aggregates produced through different dry treatments, Journal of the Korea Concrete Institute, **32(2)**, 185–191.
- Kim, G.Y., Jang, W.H., Jang, S.C., Im, J.H., Hong, D.S., Seo, C.G., Shon, J.S. (2017). Characterization of cement solidification for enhancement of cesium leaching resistance, Journal of Nuclear Fuel Cycle and Waste Technology, **16(2)**, 183–193.
- 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, **289**, 1–11.
- Kim, K.B., Lim, Y.S., Kim, E.S., Jin, S.R., Lee, H.J. (2020b). Assessment of H<sub>2</sub>O adsorption characteristics based on zeolite type, Korean Journal of Metal and Materials, **58(7)**, 501–506.
- Korea Agency for Technology and Standards(KATS) (2018). Fly ash(KS L 5405), Seoul, Korea: Korea Standards Association(KSA).
- Kořáková, J., Zatloukal, J., Reiterman, P., Kolář, K. (2017). Concrete and cement composites used for radioactive waste deposition, Journal of Environmental Radioactivity, **178–179**, 147–155.
- Mun, 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, **17(3)**, 269–277.
- Sasaki, T., Sone, T., Koyama, H., Yamaguchi, H. (2009). Steam-assisted pyrolysis system for decontamination and volume reduction of radioactive organic waste, Journal of Nuclear Science and Technology, **46(3)**, 232–238.
- Seo, E.A., Yoon, H.S., Kim, D.G., Yang, K.H., Nguyen, V.T. (2021). Feasibility tests on ground granulated powders compiled from waste concrete for soil solidification, European Journal of Environmental and Civil Engineering, 1–17.
- US EPA, Method 1315 – Revision 1. (2017). Mass Transfer Rates of Constituents in Monolithic or Compacted Granular Materials Using a Semi-Dynamic Tank Leaching Procedure, Test Method for Evaluating Solid Waste, Physical/chemical Methods.
- World Nuclear Power Market INSIGHT. (2021). Korea Energy Economics Institute, 3–7.
- Yoon, E.S., Paek, Y.L., Lim, J.H., Chung, Y.S., Choi, K.R. (2006). Long-term performance of safety related concrete structures in nuclear power plants, Proceedings of the Korea Concrete Institute Conference, **18(2)**, 237–240.

### 원전 폐콘크리트의 방사성 폐기물 처분용 고화제로의 활용을 위한 고화체 특성 평가

이 연구에서는 원전 해체 콘크리트에서 분리된 폐콘크리트 미분말을 방사성 폐기물용 고화제로 재활용하기 위한 성능평가를 수행하였다. 원전 해체 콘크리트에서 분리된 폐콘크리트 미분말을 모사한 시료를 제작하였으며, 주요 변수는 결합재 종류와 제올라이트 혼입율이었다. 고화체 특성평가는 유동성과 압축강도 및 비방사성 세슘에 대한 침출 저항성을 수행하였다. 폐콘크리트 모사시료의 압축강도는 제올라이트 혼입율이 증가함에 따라 증가하였으며, 제올라이트가 5% 이상 혼입된 고화체는 인수기준 대비 1.4~1.7배 높은 압축강도를 나타내었다. 모든 시험체의 세슘 침출지수는 6 이상으로 인수기준을 만족하였으며, SA의 침출지수는 OPC 대비 1.47~1.63배 높게 나타났다. 특히, 제올라이트 5% 치환 고화체의 28일 이후 평균 침출지수는 9.15으로 OPC 대비 약 6.4% 향상되었으며, 전 기간 동안 안정적인 성능을 나타내어 제올라이트가 세슘이온에 대한 침출저항성 향상에 효과적임을 확인하였다.