

## 폐콘크리트를 재활용한 방사성 폐기물용 고화제의 레올로지 특성 및 인수기준 특성평가

# Evaluation of Rheological Properties and Acceptance Criteria of Solidifying Agents for Radioactive Waste Disposal Using Waste Concrete Powder

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

Eun-A Seo<sup>1</sup> · Do-Gyeum Kim<sup>2</sup> · Ho-Jea Lee<sup>3\*</sup>

(Received September 5, 2022 / Revised September 20, 2022 / Accepted September 22, 2022)

In this study, performance evaluation and rheological characteristics were analyzed for recycling the fine powder of nuclear power plant dismantled waste concrete as a solidifying agent for radioactive waste disposal. The radioactive concrete fine powder was used to prepare a simulated sample, and the test specimen was prepared using Di-water,  $\text{CoCl}_2$ , and 1 mol CsCl aqueous solution as mixing water. Regardless of the aggregate mixing ratio and the type of mixing water, it satisfies the performance standard of 3.45 MPa for compressive strength at 28 days of age. All specimens satisfied the criteria for submersion strength, and the thermal cycle compressive strength satisfies the criteria for all specimens except Plain-50. As a result of evaluating the rheological properties of the solidifying agent, it was found that the increase in the aggregate mixing rate decreased the yield stress and plastic viscosity. The leaching index for cobalt and cesium of all specimens was 6 or higher, which satisfies the standard. In order to secure the stable performance of the solidifying agent, it is considered effective to use 40 % or less of the aggregate component in the solidifying agent.

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

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

## 1. 서론

전 세계적으로 원자력 발전소의 평균 가동년수는 30년 이상으로 전반적으로 노후화되었으며, 노후 원전의 가동 중지 및 해체사업이 확대되고 있다(World Nuclear Power Market INSIGHT 2021). 국내에서는 고리 1화기와 월성 1호기가 2017년 6월과 2019년 12월에 정지되었으며, 원전 해체 계획이 수립되고 있다. 일반적으로 1기의 원자력 발전소 해체에는 해체준비부터 부지 복원까지 약 15~20년이 소요되며, 막대한 예산이 투입된다. 원전해체 사업에서는 해체 폐기물의 처리 비용이 가장 큰 비중을 차지하고 있으

며, 특히 해체 폐기물의 70 % 이상은 콘크리트로 구성된다(Sasaki et al. 2009). 따라서 원전 해체 폐기물을 방사성 핵종의 농도에 따라 분리 및 처리하여 폐기물을 저감하는 기술개발이 확대되고 있다. 일반적으로 방사화 콘크리트에서 코발트(Cobalt, Co)와 유퀴륨(Europium, Eu)과 같은 핵종은 대부분 시멘트 페이스트에 존재하며, 원자로에서 발생한 중성자에 의해 방사화된다. 반면, 콘크리트 내의 골재는 대부분  $\text{SiO}_2$  성분으로 구성되며, 골재는 밀도가 높아 비방사화 또는 자체처분이 가능한 경우가 많다(Seo et al. 2021b; Kim et al. 2021). 원전 해체과정에서 발생하는 방사성 폐기물 약 50만 톤에서 유의 수준의 방사성 폐기물은 약 2 %정도로,

\* Corresponding author E-mail: h.lee@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 선임연구원 (Department of Structural Engineering Research, Korea Institute of Civil Engineering and Building Technology, Kyonggi-do, 10223, Korea)

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

Copyright © 2022 by Korean Recycled Construction Resources Institute

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited

대부분의 폐기물량을 저감 및 재활용이 가능할 것으로 예상된다 (Seo et al, 2021a).

이에 따라 방사화 콘크리트 폐기물은 파쇄와 분쇄 공정에 따라 골재와 폐콘크리트 미분말을 분리하여 골재는 자체처분을 하고, 폐콘크리트 미분말은 재수화하여 방사성 폐기물 처분용 고화제로 재활용이 가능할 것으로 판단된다(Seo et al, 2021b; Kim et al, 2021). 방사성 폐기물의 재활용을 통하여 처분되는 방사성 폐기물을 저감하여 환경기여도와 경제성을 향상할 수 있다. 특히, 방사성 폐기물용 고화제는 재령 28일을 기준으로 압축강도 인수기준은 3.45 MPa(500 psi) 이상으로 비교적 낮은 성능기준이 요구되기 때문에 폐콘크리트 미분말을 재수화하여 고화제로 재활용이 가능할 것으로 판단된다.

원전해체 폐콘크리트 미분말을 방사성 폐기물 처분용 고화제로 재활용하기 위해서는 폐콘크리트 미분말의 재수화 성능이 확보되어야 한다. 폐콘크리트 미분말의 재수화 성능은 미분말 내 포함된 골재 미분말의 혼입율에 가장 큰 영향을 받는다. 일반적으로 콘크리트에서 골재와 페이스트를 분리하는 과정에서 다량의 골재 미분말이 발생하여 콘크리트 미분말에 혼입된다. 하지만 골재 미분말은 수화 반응성이 없기 때문에 골재 미분말의 혼입율이 높아질수록 고화제의 성능이 저하되는 문제점이 있다(Seo et al, 2021a). 이에 따라 이 연구에서는 폐콘크리트 미분말 내의 골재미분말 혼입율에 따른 고화제의 인수기준 성능평가와 레올로지 특성평가를 수행하였다. 방사화 콘크리트를 실제로 사용하는 것은 높은 위험성과 실험적 한계로 인하여 모사시료를 제작하여 고화제 성능평가 실험을 수행하였다.

## 2. 실험개요

### 2.1 고화제 인수기준

방사성 폐기물 고화제는 폐기물에 존재하는 방사성 원소가 안정적으로 고정화되어야 하며, Table 1과 같은 인수기준에 만족해야 한다. 폐기물 고화제의 가장 중요한 인수기준은 압축강도이며, 압축강도는 기건상태의 압축강도와 침수 압축강도 및 열순환 압축강도가 있다. 3가지 실험 후의 압축강도는 모두 3.44 MPa(500 psi) 이상의 성능을 확보해야 한다.

기건 압축강도는 재령 28일을 기준으로 한다. 침수강도는 재령 28일 후 90일 침지한 시험체를 건조하여 측정한다. 열순환 실험은 ASTM B553에서 제시하고 있는 온도 사이클(1 cycle : 22±3 °C

Table 1. Performance evaluation criteria

Specimen conditions		Criteria	
Structural stability	As prepared	ASTM C39 (28day cure)	≥ 500 psi
	Thermal cycle	ASTM B553 ASTM C39	≥ 500 psi
	After immersion	NRC technical position on waste form, revision 1	≥ 500 psi
	Irradiation test	NRC technical position on waste form, revision 1 (after irradiation with 1.0E+6Gy)	≥ 500 psi
Free water		EPA method 9095B (paint filter liquid test)	< 0.5 vol.%
Leach index (Cs)		ANSI 16.1 / EPA1315	≥ LI 6

1hr 유지 후, 60 °C 1hr → -40 °C 1hr → 60 °C 1hr, 승온속도 10 °C/hr)을 30번 적용한 후 압축강도를 측정한다. 또한 고화제는 유리수 발생이 전체 부피의 0.5 %미만이어야 하며, 핵종의 침출 저항성을 나타내는 침출지수는 6 이상을 확보해야 한다. 이 연구에서는 고화제 인수기준 중 압축강도와 침수 및 열순환 강도를 평가하였으며, 침출실험을 진행하여 침출지수를 분석하였다.

### 2.2 실험재료

일반적으로 건식방법으로 콘크리트에서 분리된 폐콘크리트 미분말 내의 골재 성분은 30 % 이상을 차지하고 있으며, 적용 장비 및 기술에 따라 골재 성분의 비율은 현저히 영향을 받는다(Seo et al, 2021a). 폐콘크리트 내의 골재 미분말 혼입율에 따른 고화제 성능검증을 위하여 골재 미분말 혼입율은 30 %, 40 %, 50 %로 결정하였다. 폐콘크리트 미분말 모사시료를 제작하기 위하여 W/B 60 % 페이스트 시험체를 제작하였다. 페이스트 시험체는 재령 91 일 간 기건양생한 후 파쇄 및 분쇄하여 0.15 mm이하의 미분말을 제조하였다. 콘크리트에서 분리된 미분말 내 혼입된 골재 미분말을 모사하기 위하여 미분말과 동일하게 국내산 규사를 0.15 mm 이하로 분쇄하여 제조하였다. 모사 시료는 골재 혼입율에 따라 페이스트 미분말과 골재미분말을 건식으로 혼합하였다. 모사 시료는 온도 조건에 따른 콘크리트 미분말의 수화 반응성 회복에 대한 기존연구를 바탕으로 소성조건을 결정하였다(Mun et al, 2017). 모사 미분말은 전기로에서 10 °C/min의 승온속도로 최고온도 600 °C에서 2시간 소성하였다. 제조된 모사 시료의 평균 비중과 분말도는 각각 2.6 g/cm<sup>3</sup>과 2,478 cm<sup>2</sup>/g 이었다.

### 2.3 실험 계획 및 방법

이 연구에서는 원전 폐콘크리트 미분말을 중·저준위 방사성 폐기물 처분용기용 고화제로 재활용하기 위하여 골재 미분말 혼입율에 따른 고화제의 유변학적 특성 및 인수기준 성능 평가를 수행하였다.

#### 2.3.1 고화제 배합설계

고화제의 성능평가를 위하여 골재 미분말 혼입율에 따른 페이스트 시험체를 제작하였으며, 시험체의 배합설계는 Table 2와 같다. 고화제의 인수기준 성능평가를 위한 실험변수는 폐콘크리트 미분말 내의 골재 미분말 혼입율과 배합수 종류로 설정하였다. 폐콘크리트 미분말 내 골재 미분말 혼입율은 30 %, 40 %, 50 % 결정하여 폐콘크리트 모사시료를 제조하여 결합재로 사용하였다. 중·저준위 방사성 처분용 고화제의 성능평가를 진행하는데 있어서 실제 방사성 핵종을 사용하는 것은 안전상 및 현실적인 한계가 있어서 방사성 원소와 동일한 화학적 거동을 나타내는 비방사성 핵종을 이용하여 성능검증을 수행하였다(Kim et al. 2021). 일반적으로 동일한 원소는 방사성의 유무와 관계없이 유사한 화학적 거동을 나타내기 때문에 비방사성 물질을 고화제의 배합수로 사용하여 고화제의 핵종 고정화 성능과 인수기준 성능을 평가하였다(Kim et al. 2021). 시험체 제작 시 염화코발트(Cobalt chloride,  $CoCl_2$ )와 염화세슘(Cesium chloride,  $CsCl$ )을 사용하였으며, 보수적인 평가를 위하여 고농도의 포화상태인 1 mol 수용액으로 제조하여 배합수로 사용하였다. 또한 고화제 시험체의 비방사성 핵종의 영향을 분석하기 위하여 동일한 결합재에 대하여 증류수(Distilled water, Di water)를 배합수로 사용한 시험체도 제작하였다. 제작된 고화제 시험체는 항온항습환경(온도  $20 \pm 2$  °C, 습도  $60 \pm 5$  %)에서 양생하였다.

Table 2. Mix composition of solidifying agent

Group	Specimen	W/B (%)	Water	Biner (%)	
				Paste powder	Sand powder
I	Plain-30	50	Di water	70	30
	Plain-40			60	40
	Plain-50			50	50
II	Co-30		CoCl <sub>2</sub> 1 mol	70	30
	Co-40			60	40
	Co-50			50	50
III	Cs-30		CsCl 1 mol	70	30
	Cs-40			60	40
	Cs-50			50	50

#### 2.3.2 압축강도

압축강도 측정용 고화제 시험체는  $\varnothing 25 \times 50$  mm의 원주형으로 제작하였으며, 압축강도는 KS L 5105(2017)에 따라 측정하였다. 고화제의 인수기준 성능평가를 위하여 기건 압축강도와 침수 압축강도 및 열순환 실험 압축강도를 측정하였다. 기건 압축강도는 재령 7, 28, 91일 측정하였으며, 침수강도는 재령 28일 동안 항온항습실에서 양생한 후 90일 동안 침수시킨 후에 건조하여 측정하였다. 열순환 압축강도는 ASTM B553에서 제시한 온도조건을 30사이클 적용 후 압축강도를 측정하였다.

#### 2.3.3 레올로지 특성

고화제는 방사성 폐기물 처분용기에 투입되며, 폐기물과의 균질한 혼합성을 확보해야한다. 이에 따라 굳지 않은 시멘트계 고화제의 항복응력과 점도 측정을 통하여 고화제의 초기 특성을 정량적으로 평가하고자한다. 본 연구에서 고화제의 레올로지 측정은 Fig. 1과 같이 항온유지가 가능한 온도조절 용기와 DV-III programmable rheometer(Brookfield)를 사용하였다. 레올로지 특성은 전단속도의 변화에 대한 전단응력의 변화량을 산정하여 평가하였다. 전단속도를 상승-하강계단식으로 설정하여 Hysteresis loop area에 의한 측정값의 이력을 측정하였으며, 전단응력의 하강계단 측정결과를 직선회귀분석을 통하여 Bingham 모델로 해석하였다. 페이스트의 레올로지 측정은 페이스트 배합 직후 레오미터 페이스트를 투입하여 소성점도와 항복응력을 측정하였으며, 측정된 결과를 이용하여 hysteresis loop의 면적을 산정하였다.



Fig. 1. DV-III programmable rheometer

#### 2.3.4 고화제 침출성능평가

골재 혼입율에 따른 폐콘크리트 미분말을 재활용한 고화제의 침출성능평가는 배합수를  $CsCl$ 와  $CoCl_2$  1 mol 수용액으로 사용한 고화제 시험체에 대하여 수행하였다.

고화제 침출실험은 EPA 1315를 기준으로 수행하여 침출지수를

산정하였다. 침출성능평가용 고화제 시험체는 증류수에 시험체 (Ø15×30 mm)를 침지시킨 후 2, 7시간, 1, 2, 7, 14, 28, 42, 49, 63일의 간격으로 침출수를 교체하였다(US EPA 1315 2017). ICP-MS 분석을 통하여 회수된 침출수에 침출된 Cs와 Co의 농도를 측정하였으며, 식 (1)~(2)로 침출지수를 평가하였다.

$$D_i = \pi \left[ \frac{M_{t_i}}{2\rho C_0 (\sqrt{t_i} - \sqrt{t_{i-1}})} \right]^2 \quad (1)$$

여기서,  $D_i$ 는 침출수에서 측정된 물질 A의 확산도( $m^2/s$ )이며,  $M_{t_i}$ 는 침출 중 방출되는 질량( $mg/m^2$ ),  $\rho$ 는 건조 상태 시료의 밀도 ( $kg-dry/m^3$ ),  $t_i$ 는 침출시간,  $C_0$ 는 물질 A의 초기 함유량( $mg/kg$ )이며, 식 (1)을 통하여 산출된 확산도를 식 (2)에 대입하여 침출지수를 결정하였다.

$$LI = -\log \left( \frac{D_i}{cm^2/s} \right) \quad (2)$$

### 3. 실험결과 및 분석

#### 3.1 유동성

배합수 종류와 폐콘크리트 미분말 내 골재 혼입율에 따른 고화제의 Flow test 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 모든 고화제 배합은 실험변수와 관계없이 200 mm 이상의 유동성을 확보하였다. 증류수를 배합수로 사용한 Group 1의 유동성은 220~250 mm의 범위로 나뉘었으며, 골재미분말 혼입율이 낮아지고 페이스트 미분말 혼입율이 높아짐에 따라 Flow가 9~12 % 낮게 나타났다.  $CoCl_2$  수용액을 배합수로 사용한 Group 2의 Flow는 200~228 mm로 나타났으며, 페이스트 미분말 혼입율이 높아질수록 6~12 % 유동성이

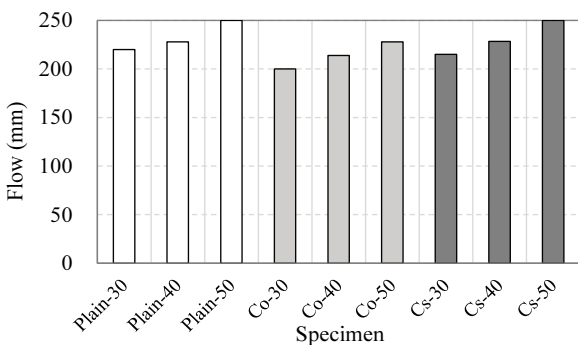


Fig. 2. Flow test result

저하되어 나타났다.  $CsCl$  수용액을 배합수로 사용한 Group 3의 유동성은 215~250 mm로 측정되었으며, 페이스트 미분말 혼입율이 증가함에 따라 유동성 저하가 9~14 % 나타났다.

골재 미분말 혼입율이 저하됨에 따라 유동성이 저하되는 것은 골재 미분말이 혼입율이 낮아진 만큼 페이스트 미분말 혼입율이 높아지고, 페이스트 미분말 혼입율이 높아짐에 따라 배합수와 반응하는 페이스트 미분말의 양이 증가되어 수화도가 높아지기 때문에 유동성이 저하되는 것으로 판단된다. 동일한 결합재를 사용한 고화제의 경우, 배합수와 관계없이 유동성은 유사하게 나타났다.  $CoCl_2$  수용액을 사용한 고화제의 유동성이 비교적 낮게 나타났지만, 200 mm 이상의 유동성을 확보하여 모든 배합은 고화제로써 폐기물과 균질하게 혼합될 수 있는 유동성능을 확보함을 확인할 수 있었다.

#### 3.2 레올로지 특성

회전형 점도계의 회전속도를 상승 및 하강하면서 측정할 경우 결과는 Fig. 3의 빗금친 영역에서의 형태와 같이 나타난다. 이 연구에서는 Bingham model을 적용하여 상승, 하강 그리고 전 구간 측정된 결과에 대해 선형 추세선을 활용, y 절편 값은 항복응력, 기울기는 소성점도로 산출하였다.

Fig. 4는 레올로지 특성 평가결과를 정리하였으며 (a)는 항복응력을, (b)는 소성점도를 각 배합에 따라서 상승곡선과 하강곡선 그리고 평균값의 순서로 나타냈다. 모든 배합에서 골재미분말의 양이 증가됨에 따라 항복응력은 골재미분말이 30 %를 혼입된 결과와 비교했을 때 전반적으로 감소하는 경향이 나타났다. 다만 Plain 배합과 Cs 배합에서는 골재미분말이 40 %에서 50 %로 증가하면서 항복응력이 증가하는 경향이 나타났는데 기존연구(Xie et al. 2021)에 의하면 골재사용량이 증가됨에 따라 항복응력의 경향

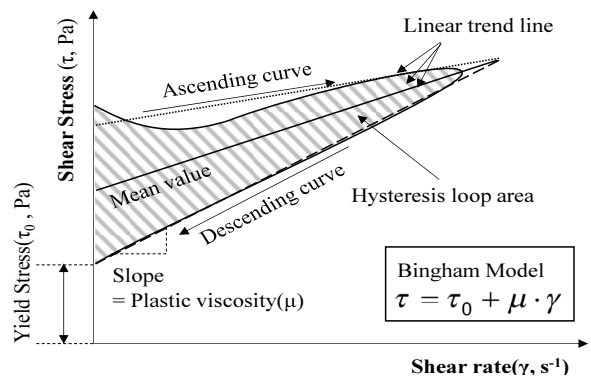
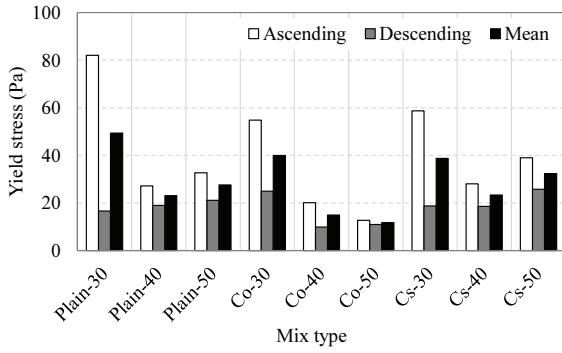
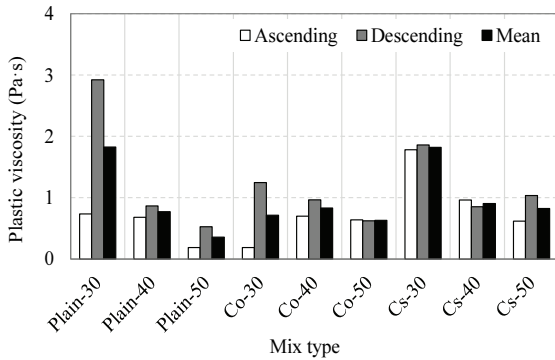


Fig. 3. Result explanation of rheological properties



(a) Yield stress



(b) Plastic viscosity

Fig. 4. Evaluation of rheological properties

은 감소하지만 일부구간에서는 증가하는 경향이 나타나 이 연구와 유사한 경향이 나타남을 확인하였다.

결합재의 종류와 관계없이 모든 배합에서 결합재가 70 % 포함된 배합은 상승곡선과 하강곡선의 항복응력 간 차이가 크게 나타났다. 이는 페이스트의 양이 가장 많기 때문에 골재미분말이 다량 포함된 배합과 비교하여 상대적으로 큰 thixotropy로 인해 그 차이가 높게 나타난 것으로 사료된다.

소성점도는 골재미분말의 혼입량이 증가됨에 따라 점차적으로 감소되는 경향이 뚜렷이 나타났다. 특히 Di water를 사용한 배합에서 골재미분말 혼입량이 30 %에서 40 %로 증가됨에 따라 큰 폭의 소성점도 감소가 일어났다. CoCl<sub>2</sub>를 혼합한 배합수를 사용한 경우, Di water와 CsCl을 사용한 경우와 비교하여 골재미분말이 30 % 혼입된 경우의 배합에서는 큰 폭의 소성점도 차이가 발생했다. 다만 골재미분말이 40, 50 % 사용된 경우는 배합수와 상관없이 유사한 경향이 나타남을 확인했다. 레올로지 특성을 평가한 결과, 골재미분말이 30 % 혼입된 경우 페이스트의 상대적으로 높은 체적으로 인해 배합수의 종류가 영향을 미쳤으나 골재미분말의 증가에 따라 배합수의 영향은 감소되는 경향이 나타났다.

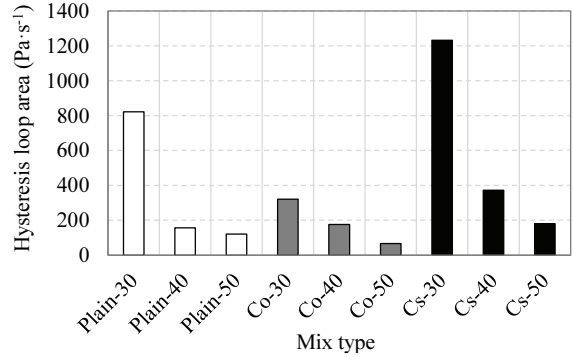


Fig. 5. Hysteresis loop area

Fig. 5에 hysteresis loop area의 산출결과를 포함하였다. 앞서 Fig. 3에서 나타낸바와 같이 상승곡선과 하강곡선에서의 차이가 크게 발생할수록 hysteresis loop의 면적이 더 넓게 나타난다. 결과적으로 Fig. 5에서 나타나듯이 골재 미분말 혼입율이 30 % 수준인 경우 hysteresis loop 면적이 가장 높게 나타났으며, 이는 시멘트페이스트의 영향으로 인한 것으로 보인다. 다만 항복응력과 소성점도는 Plain-30이 가장 높게 나타났으나 실제 hysteresis loop 면적은 Cs-30이 가장 높게 나타났다. 이는 Fig. 4(b)의 소성점도 결과에서 볼 수 있듯이 상승곡선과 하강곡선의 기울기 차이가 거의 없었지만 Fig. 4(a)의 항복응력 값의 차이가 크게 나타났으므로 두 곡선간의 면적이 상당히 넓게 나타났기 때문으로 해석된다. 이 결과와 CsCl 3M을 혼합한 배합수를 사용한 경우, 점도는 경시변화는 없으나 항복응력은 경시변화 영향이 발생하는 것으로 나타났다. 다만 골재미분말의 사용량이 증가한 Cs-40 배합의 hysteresis loop 면적은 약 30 % 수준으로 낮아졌으며, Cs-50은 골재미분말을 50 % 사용한 다른 배합들과 비교하여 유사한 수준으로 감소되는 것을 확인하였다.

### 3.3 압축강도

골재 미분말 혼입율과 배합수 종류에 따른 고화제 압축강도를 Fig. 6에 나타내었다. 모든 고화제 시험체는 실험변수와 관계없이 인수기준인 압축강도 3.45 MPa 이상을 만족하였다. Group 1의 재령 7일 강도는 1.86~7.32 MPa의 범위로 나타났으며, Plain-30의 재령 7일 압축강도 대비 Plain-40과 Plain-50의 압축강도는 각각 13.21 %와 56.92 % 낮게 나타났다. Plain-50의 재령 28일 압축강도는 3.75 MPa이며, Plain-30은 7.49 MPa로 Plain-50 대비 약 2배 높게 나타났다. 재령 91일 압축강도는 4.07~8.60 MPa로 나타났으며, 재령 28일 압축강도에서 평균적으로 1.2배 향상되었다.

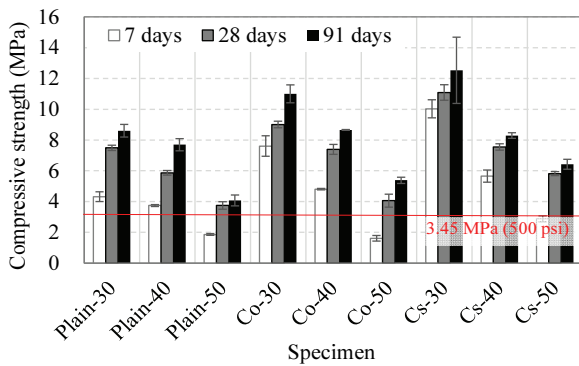


Fig. 6. Compressive strength

Group 2는  $\text{CoCl}_2$  수용액을 배합수로 사용한 고화제 시험체이며, 재령 7일 압축강도는 1.61~7.61 MPa로 나타났다. Co-30의 재령 7일 압축강도와 비교하여 Co-40과 Co-50은 각각 36.81%와 78.85% 저감되었으며, Di-water를 배합수로 사용한 경우보다 골재 미분말 혼입율 증가에 따른 강도 저하율이 높게 나타났다. Co-30의 재령 28일 압축강도는 9.01 MPa이었으며, Co-40과 Co-50 대비 각각 1.22배와 2.22배 높은 성능을 확보하였다. 재령 91일의 Co-30과 Co-50 압축강도는 11.00 MPa와 5.38 MPa로 측정되었다.

Group 3은  $\text{CsCl}$  수용액을 배합수로 사용한 고화제 시험체이며, 재령 7일 압축강도는 2.89~10.02 MPa로 나타났다. 재령 28일에서 골재 미분말 혼입율 증가에 따른 압축강도 저감율은 36.81~78.85%로 Group 1~2와 동일한 경향을 보였다. Cs-30의 재령 28일 압축강도는 11.09 MPa로, Cs-40과 Cs-50은 7.35 MPa와 5.82 MPa로 고화제 인수기준을 상회하는 성능을 확보하였다. 재령 91일 압축강도는 6.43~12.53 MPa로 나타내었다.

재령 28일 압축강도를 기준으로 고화제의 압축강도 발현율을 Fig. 7에 나타내었다. Group 1의 재령 7일 강도 발현율은 0.58~0.60으로 골재 미분말 혼입율과 관계없이 유사한 강도 발현율을 나타내었다. 재령 91일 경우, 28일 대비 평균적으로 1.26배 강도가 향상되었다. Group 2의 재령 28일 대비 7일의 강도 발현율은 Co-30이 0.84로 나타났으며, Co-40과 Co-50은 0.65와 0.53으로 나타났다. Group 2의 재령 7일 압축강도 발현율은 Group 1과 비교하여 약 11% 높게 나타났다. Group 2의 재령 91일 압축강도 발현율은 1.17~1.32의 범위로 나타났다. Group 3의 재령 7일 강도 발현율은 Cs-30은 0.90, Cs-40과 Cs-50은 각각 0.75와 0.51이었다. Group 3의 재령 7일 압축강도 발현율은 Group 1과 2에 비교하여 각각 1.18배와 1.06배 높게 나타났다. 반면에 재령 91일 압축강도는 재령 28일 대비 평균적으로 1.11배 향상되어 비교적 장기 강

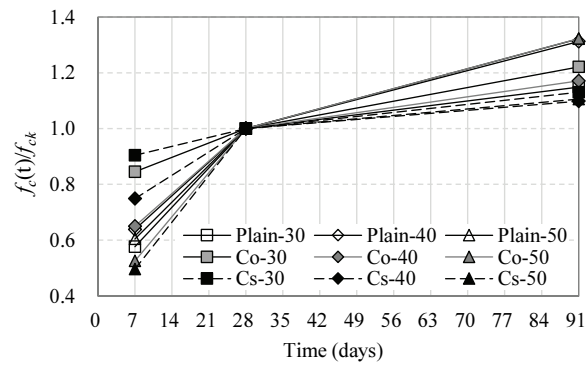


Fig. 7. Compressive strength development

도 발현율은 낮은 경향을 보였다.

고화제의 압축강도는 결합재 내의 골재 미분말 혼입율에 대하여 현저한 영향을 받았다. 따라서 폐콘크리트 미분말을 방사성 폐기물 처분용 고화제로 사용하는데 있어서 안정적인 압축강도 성능을 확보하기 위해서는 골재 미분말은 40% 이하로 혼입되어야 할 것으로 판단된다.

### 3.4 침수강도 및 열순환 강도

방사성 폐기물 처분용 고화제는 침수환경과 급격한 온도변화에도 안정적인 고정화 성능을 확보해야 한다. 고화제의 시험에 대하여 재령 28일 양생 후에 90일 간의 침수한 압축강도와 열순환 실험 후 측정된 압축강도를 Fig. 8에 나타내었다. 또한 열순환 압축강도와 침수강도를 재령 28일 압축강도와 비교하기 위하여 각각의 압축강도를 재령 28일 압축강도로 나눈 압축강도 비를 Fig. 9에 나타내었다.

Group 1의 열순환 압축강도는 2.48~5.40 MPa로 나타났으며, Plain-50의 경우 고화제 인수기준을 만족하지 못하였다. Group 1의 경우, 재령 29일 압축강도 대비 열순환 압축강도가 66~75% 수준으로 저감되어 나타났다. Group 1의 침수강도는 3.69~7.50 MPa로 측정되어 골재 미분말 혼입율 30~50%에서 모두 고화제 인수기준을 만족하였다. 침수강도는 열순환 압축강도와 달리 재령 28일 강도 대비 동등 이상의 압축강도를 나타내었다. 이는 침수환경에서 미수화물이 물과 반응하여 추가적인 수화물을 생성하여 압축강도가 증진된 것으로 판단된다.

Group 2의 열순환 압축강도는 4.89~11.77 MPa의 범위로 나타났으며, 재령 28일 압축강도 대비 평균적으로 1.31배 높게 나타났다. Group 2의 열순환 압축강도는 Group 1과 달리 재령 28일 대비 강도가 증진되는 경향이 나타났다. 이 압축강도 증진 현상은 60°C의 고온환경에서 Co 이온 등이 수화물 생성에 영향을 준 것으로

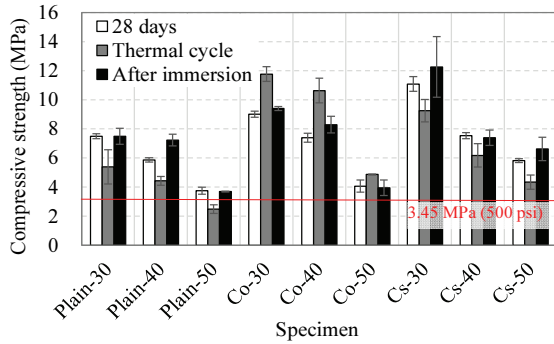


Fig. 8. Thermal cycle and immersion compressive strength

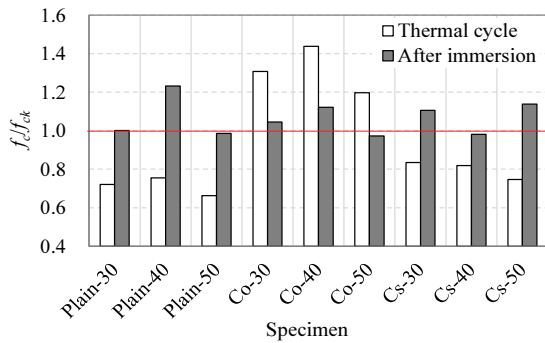


Fig. 9. Ratio of immersion strength and thermal cycle compressive strength compared to  $f_{ck}$

판단된다. 하지만 정확한 분석을 위해서는  $CoCl_2$ 를 배합수로 사용한 고화제의 온도 조건에 따른 수화생성물의 분석에 대한 추가적인 연구가 필요할 것으로 판단된다. Group 2의 침수강도는 3.95~9.40 MPa로 측정되었으며, 재령 28일 압축강도 대비 0.97~1.12 배로 Group 1과 유사한 경향을 나타내었다.

Group 3에서 Cs-30의 열순환 압축강도는 9.26 MPa이었으며, Cs-40과 Cs-50은 각각 6.18 MPa와 4.34 MPa로 측정되었다. 재령 28일 압축강도 대비 Group 2의 열순환 강도는 평균 80 % 수준으로 나타났으며, Group 1 대비 재령 28일 압축강도 대비 열순환 강도의 강도저하율은 9 % 낮게 나타났다. Group 3의 침수강도는 6.62~12.26 MPa로 나타났으며, Group 1과 동일하게 재령 28일 압축강도 대비 0.98~1.14배의 수준으로 측정되었다.

결과적으로 열순환 실험 후 측정된 압축강도는 Plain-50 이외의 모든 시험체에서 인수기준 강도를 만족하였다. 고화제 인수기준 중 열순환 압축강도를 만족하기 위해서는 폐콘크리트 미분말 내의 골재 성분의 혼입율은 40 %이하여야하며, 골재 미분말 혼입율이 50 %이상일 경우에는 압축강도 성능 개선을 위한 추가적인 재료의 혼입이 필요할 것으로 판단된다. 침수강도는 모든 시험체

가 인수기준을 만족하였다. 시멘트계 고화제의 경우, 고화제 시험체의 침수기간동안 고화제 내의 미수화물이 물과 반응하여 추가적인 수화물을 생성할 수 있기 때문에 재령 28일 압축강도대비 동등 이상의 성능을 확보할 수 있다.

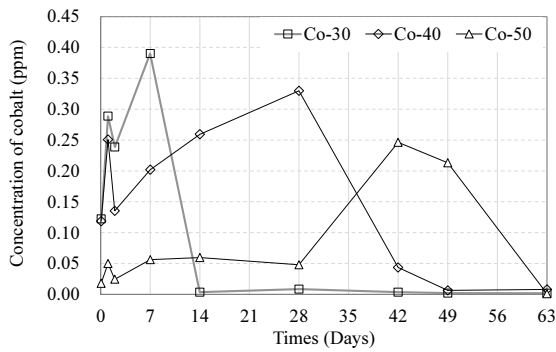
### 3.5 비방사성 핵종을 활용한 침출특성 평가

고화제의 핵종에 대한 침출저항성능을 평가하기 위하여 EPA 1315dp 준하여 침출실험을 수행하였다. 코발트와 세슘이온의 침출농도와 침출지수는 Fig. 10에 나타내었다.

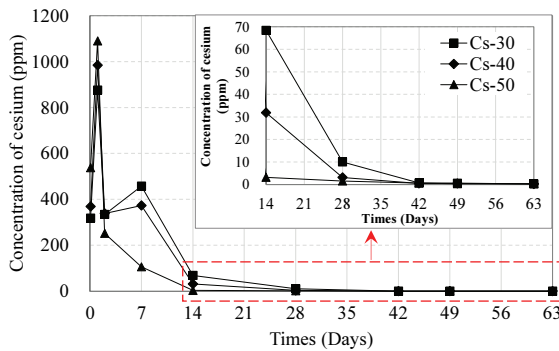
Group 2의 코발트 이온 침출농도는 실험기간동안 모두 0.4 ppm 미만으로 현저히 낮게 나타났다. 7일 이내의 코발트 이온의 침출량은 골재 미분말 혼입율이 높을수록 낮은 경향이 나타났다. 하지만 침출 14일 이후부터 Co-30의 침출량이 현저히 저감되고 침출 42일부터는 Co-40의 침출량이 급격하게 저감되어 침출농도는 미미한 수준으로 나타났다. Group 3의 코발트 세슘 이온의 침출 농도는 1일까지 침출량이 급격하게 증가되고 2일부터 서서히 저감되는 경향을 나타내었다. Group 2의 세슘이온의 최대 침출량은 재령 1일의 875.652~1089.69 ppm으로 높은 농도로 나타났다. 하지만 이는 침출 시험체를 제작 시에 과포화된 CsCl 1 mol 수용액을 배합수로 사용하였기 때문에 상대적으로 침출량이 높게 나타난 것으로 판단된다. 또한 모든 시험체는 14일을 기점으로 세슘 이온 침출량이 안정적으로 낮아지는 경향을 나타내었으며, 침출 28일 이후부터 침출수의 세슘이온 농도는 9.98 ppm 미만으로 현저히 낮게 측정되었다.

고화제의 코발트와 세슘이온에 대한 침출 저항성능은 혼입된 이온량 대비 침출기간 중에 침출된 이온의 침출율을 산정하는 침출지수를 통하여 평가할 수 있다. 침출지수는 침출저항성능을 나타내는 지표로 값이 높을수록 침출 저항성능이 높은 것을 뜻한다. 고화제의 침출 실험결과, 코발트와 세슘에 대하여 모든 시험체의 침출지수는 전 기간 동안 인수기준인 6 이상을 만족하였다.

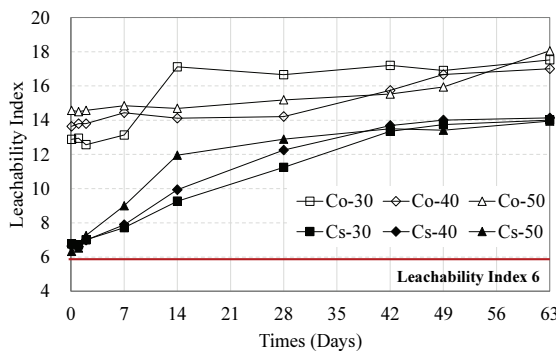
Group 2의 2일 이내의 초기 침출지수는 평균적으로 13.70이었으며, 침출 14일 이후의 평균 침출지수는 16.17로 각 시험체의 침출지수는 수렴하는 경향을 나타내었다. Group 3의 2일이내의 평균 초기침출지수는 6.76이었으며, 침출 기간이 증가함에 따라 침출지수가 계속적으로 증가되고 침출 28일부터 수렴하는 경향을 나타내었다. 코발트 이온에 대한 침출지수는 세슘이온의 침출지수와 비교하여 초기 침출에서는 약 2.03배 높게 나타났으며, 14~63일의 기간의 평균 침출지수는 코발트 이온에 대한 저항성능이 세슘이온 대비 1.27배 높게 나타나 핵종의 높은 고정화성능을 확인할



(a) Analysis of cobalt concentration with a leaching time



(b) Analysis of cesium concentration with a leaching time



(c) Leachability index

Fig. 10 Evaluation of leaching properties

수 있었다. 이는 염화세슘의 높은 용해도로 인하여 상대적으로 낮은 용해도의 코발트 이온에 대한 침출저항능이 높게 측정된 것으로 판단된다(Yang and Kim 2007).

또한 초기 침출기간에서는 골재 미분말 혼입율이 높을수록 침출지수가 높았으며, 침출 28일 이후부터 영향도는 저감되는 경향을 나타내었다. 침출 초기에 핵종의 고정화에 골재 미분말 성분이 물리적 및 화학적으로 영향을 주며, 일정기간 이후부터는 고화제의 추가적인 수화반응으로 인하여 침출저항능이 향상되는 것

로 판단된다. 일반적으로 폐콘크리트를 재수화한 고화제는 내부에 다량의 미세공극을 가지고 있으며, 핵종이 고화제의 공극의 흡착 및 수화반응에 의하여 고정화하여 침출이 억제된다(Seo et al. 2021a). 하지만 핵종과 고화제 미분말의 고정화 형태와 고정화 성능의 영향분석을 위해서는 추가적인 분석이 필요하다.

따라서 모든 시험체의 침출지수 기준인 60이상을 상회하는 성능을 확보하였다. 폐콘크리트 미분말 내에 골재성분이 30~50 % 혼입된 경우에 코발트와 세슘 이온의 고정화를 위한 고화제로써 재활용 가능함을 확인하였다.

#### 4. 결론

이 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 비방사성 핵종(Co, Cs)을 이용한 침출 저항성능 평가를 수행하였으며, 다음과 같은 결론은 얻었다.

1. 고화제의 유동성은 배합수와 관계없이 골재미분말 혼입율이 감소됨에 따라 저감되었으며, 모든 시험체는 Flow 200 mm 이상으로 고화제로 충분한 유동성을 확보하였다.
2. 골재혼입율의 증가는 항복응력과 소성점도를 감소시키는 것으로 나타났다. CsCl 수용액을 배합수로 사용한 Cs-30 배합의 경우 shear rate의 증가와 감소에 따른 상승, 하강 곡선에서도 동일한 수준의 기울기를 유지하여 시간에 따른 점도변화가 발생하지 않는 특징으로 인해 hysteresis loop 면적이 가장 넓게 나타났다.
3. 골재 혼입율과 배합수 종류와 관계없이 재령 28일 압축강도 인수기준인 3.45 MPa를 만족하였다.
4. 골재 혼입율이 30 %인 고화제는 50 %인 시험체 대비 재령 28일 압축강도가 평균적으로 약 2.02배 높게 나타났다.
5. 코발트와 세슘 수용액을 배합수로 사용한 고화제의 재령 7일 압축강도 발현율은 평균적으로 68 %로 비교적 낮게 나타났지만, 골재 혼입율이 30 %인 경우에는 7일 압축강도 발현율이 84 % 이상을 나타내었다.
6. 모든 시험체는 침수강도 인수기준을 만족하였으며, 열순환 압축강도는 Plain-50 이외의 모든 시험체에서 인수기준 강도를 만족하였다.
7. 모든 시험체의 코발트 이온과 세슘이온에 대한 침출지수는 6



이상으로 인수기준을 만족하였으며, 초기 침출저항성능은 코발트에 대한 고화제의 침출지수가 세슘이온과 비교하여 2.03배 높은 수준이었다.

- 8. 페콘크리트 미분말을 방사성 폐기물 처분용 고화제로 재활용하기 위해서는 안정적인 성능확보를 위하여 고화제 내 골재 성분은 40 %이하로 사용하는 것이 효과적일 것으로 판단된다.

### Conflicts of interest

None.

### 감사의 글

본 연구는 산업통상자원부(MOTIE)와 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 연구 과제입니다. (No. 2020321 0100150)

### References

ASTM C 39 (2020). Standard Test Method for Compressive Strength of Cylindrical Concrete Specimens, ASTM International, West Conshohocken.

ASTM B 553 (1991). Standard Test Method for Thermal Cycling of Electroplated Plastics, ASTM International, West Conshohocken.

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.

Korea Agency for Technology and Standards (2017). Testing Method for Compressive Strength of Hydraulic Cement Mortars

(KS L 5105), Seoul, Korea: Korea Standards Association.

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 [in Korean].

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., Lee, H.J., Kwon, K.H., Kim, D.G. (2021a). Characteristics evaluation of solidifying agent for disposal of radioactive wastes using waste concrete powder, *Journal of Korean Recycled Construction Resources Institute*, **9(4)**, 451–459 [in Korean].

Seo, E.A., Yoon, H.S., Kim, D.G., Yang, K.H., Nguyen, V.T. (2021b). 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*.

US EPA, Method 9095B. (2004). Paint Filter Liquids Test.

World Nuclear Power Market INSIGHT (2021). Korea Energy Economics Institute, 3–7.

Xie, J., Cui, X., Guo, N., Liu, G. (2021). Influence of mix proportions on rheological properties, air content of wet shotcrete—a case study, *Applied Sciences*, **11(8)**, 3550.

Yang, H.Y., Kim, J.Y. (2007). A feasibility study on the polymer solidification of evaporator concentrated waste, *Journal of Nuclear Fuel Cycle and Waste Technology*, **5(4)**, 297–308 [in Korean].

#### 페콘크리트를 재활용한 방사성 폐기물용 고화제의 레올로지 특성 및 인수기준 특성평가

이 연구에서는 원전해체 페콘크리트 미분말을 방사성 폐기물 처분용 고화제로 재활용하기 위한 인수기준 성능 및 레올로지 특성을 분석하였다. 고화제는 방사성 콘크리트 미분말을 모사하여 사용하였으며, 시험체는 증류수, CoCl<sub>2</sub>, CsCl 1 mol 수용액을 배합수로 사용하여 제작하였다. 골재 미분말 혼입율 및 혼합수의 종류에 관계없이 재령 28일 압축강도 성능기준 3.45 MPa를 만족하였다. 모든 시험체는 침수강도 기준을 만족하였고 열순환 압축강도는 Plain-50을 제외한 모든 시험체에 대하여 인수기준을 만족하였다. 고화제의 레올로지 특성을 평가한 결과, 골재 혼입율이 증가할수록 항복응력과 소성점도가 감소함을 알 수 있었다. 모든 시험체의 코발트와 세슘에 대한 침출지수는 6 이상으로 인수기준을 만족하였다. 방사성 폐기물 처분용 고화제의 안정적인 성능을 확보하기 위해서는 고화제 내의 골재 성분은 40 % 이하로 사용하는 것이 효과적인 것으로 판단된다.