

원전해체 시 발생하는 콘크리트 및 토양 폐기물 감용 기술 개발

엄 우 용
2018. 10. 24

포항공과대학교
첨단원자력공학부



Contents

1.Introduction

2.Concrete wastes

3.Soil wastes



1. Introduction

원자력발전소의 해체 단계

- 영구정지-해체준비-제염-절단-철거-폐기물처리-환경복원 과 같은 총 6단계로 진행
- 총 15년에서 30년의 시간이 필요

구분	주요수행업무
영구정지	정지 및 계통 냉각
계획/준비	방사선원항 평가/해체계획서 작성/상세 비용평가/인허가 취득
인출/격리	사용후연료 인출/계통제염/계통분리 및 구역 차폐
안전관리	방사성 기기/구역 격리 및 관리(5~20년)
해체/제염	기기-구조물해체/기기제염/해체폐기물 감용-처리-포장
복원/종료	토양-건물 표면 오염제거/잔류 방사선(능) 평가 및 복원/규제 해제



1. Introduction

원전 해체 시 발생하는 콘크리트 폐기물과 토양폐기물의 중요성

- 원전 해체 과정 중 생성되는 폐기물 중, 많은 비중을 차지하는 금속, 콘크리트, 토양 폐기물
- 금속 폐기물에 비해 콘크리트 폐기물의 재사용 및 재활용 방안 연구가 많지 않음
- 고체 폐기물의 약 70 % 이상을 차지. 이는 발전소 운전기간 동안 발생하는 폐기물의 총량을 훨씬 상회

Table 1. 미국 Maine Yankee 원전의 해체 폐기물 발생량*

방사성 폐기물	실제 발생량(ton)
콘크리트	63,485
토양	22,468
Commodities	8,762
Distributables	1,358
대형기기	2,495
소계	98,568
콘크리트 폐기물/전체 백분율	66.45 %

* 출처: Maine Yankee Decommissioning Experience Report, 1997-2004. EPRI



1. Introduction

해외 원전 해체 콘크리트 폐기물 분리 및 제염 사례

- **네덜란드** : 해당 실험에서 시멘트는 Ordinary Portland Cement를 사용, 콘크리트의 골재와 시멘트 분리는 오븐 내에서의 가열 및 기계적인 방법 (Crusher & Mill)을 이용. 또한 동전기적 분리를 이용하여, 골재에 붙어있던 방사성 시멘트 미분말을 분리
- **일본** : 콘크리트 폐기물을 가열, 파쇄 그리고 분리 등의 여러 공정을 거쳐 고품질의 재활용 혼합재를 생산하는 방법을 연구. 파쇄 공정에는 기계적 분쇄, Air-heating, Mechanical grinding 방법을 이용, 분리 공정에는 Sieving, Separator를 이용
- **프랑스** : 콘크리트 폐기물을 600°C 이상의 온도에서 고온 열처리하여 방사성 콘크리트 폐기물을 재활용하는 DECO 공정을 개발
- **미국** :
 - ① **ELECTROSORB process**: 동전기적 추출기술과 폴리머 전극 포집기술을 결합하여 콘크리트 해체 폐기물로부터 오염물질을 제거하는 기술
 - ② **AWD-CON process**: 제염과 분리공정을 모두 포함하는 방법으로, dry-vacuum으로 콘크리트 표면의 오염물질을 처리한 후 거품형태의 부식성/산성 세정제로 처리하는 반복 작업
 - ③ **Oceaneering Technology**: 원격 조정 장치에 드라이아이스(CO₂) 분사 장치를 결합시켜 콘크리트를 제염하는 방법
 - ④ **AVCO/Electro Hydraulic System**: Electric-Hydraulic (EH) 장치를 사용하여, 두 전극 상에서 발생하는 강한 전기적 방전 pulse에 의해 생성되는 충격파와 bubble을 이용해 오염 콘크리트를 제염하는 방법



1. Introduction

^{60}Co & ^{137}Cs

- 콘크리트 내부에 주로 존재하는 방사능 핵종
- **Activity** (below 3000 Bq/kg) in radioactive concretes
- 독성이 있으며, 각각 반감기는 ($t_{1/2}$ =5.27 and 30.17 years)

본 연구의 목적

- 원전 해체 후 발생하는 콘크리트 폐기물과 오염된 토양에 존재하는 Co 및 Cs 핵종을 제거하기 위하여 열처리, CORD 공정 응용 및 공침 방법을 활용한 제염기술을 개발
- 원전 해체작업 시 발생하는 폐기물(콘크리트 및 토양)의 감용에 중점을 둔 최적화된 제염기술을 개발하여 앞으로 해체되는 국내외 원전에서 발생하는 폐기물을 효과적으로 감용 하는데 목표



1. 원자력환경 연구센터 필요성

- 국산화된 원자력 해체 기술 개발 필요

- 해체 시 발생하는 폐기물의 감용을 위한 기술 개발 필요

- 70%이상을 차지하는 콘크리트 폐기물의 저감을 위한 제염기술 개발 필요

- 콘크리트 폐기물 및 제염 시 발생 가능한 폐기물의 양을 최소화하고 안정화 시킬 수 있는 새로운 고화체 개발이 필요



- 원자력해체 후 그 지역의 방사선 농도는 자연방사선 기준을 만족해야 함으로 적합한 부지복원 및 환경평가 기술 개발 필요

- 해체폐기물에 대한 특성과 자료의 확보를 통하여 최종관리 방안 수립이 필요하며 처분방안 별 처분안정성 평가 필요

1. 원자력환경 연구센터 연구과제 목표

세부과제 1)

원전해체 시 발생하는
콘크리트 및 토양
폐기물 감용을 위한
선택적 제염기술 개발

제염 후 고화체 개발

세부과제 2)

제염 폐기물 담지용
신조성 세라미크리트
개발

토양 제염 기술 개발

원자력환경선진연구센터
Advanced Nuclear Environment Research
Center (ANERC)

처분 안정성 평가

세부과제 4)

원전해체 부지 복원 및
환경평가 기술 개발

해체폐기물 처분 후
부지복원

세부과제 3)

원자력발전소 해체에
의해 발생하는 해체
폐기물의 처분안전성 및
적합성 평가



1. Introduction

본 연구의 개요

목 표

원전해체 시 발생하는 콘크리트
및 토양 폐기물 감용을 위한
제염기술개발

- 개선된 CORD공정을 기반으로 제염공정개발 및 공침기술개발
- 폐기물 제염계수 80% 이상
- Co, Cs의 선택적 제거
- 제염 전후 콘크리트, 토양의 특성분석 및 핵종 결합 구조 분석
- 화학적 제염 반응 기작 규명

포항공과대학교

1년차

문헌조사 및 콘크리트, 토양 시료 제작

2년차

3년차

4년차

5년차

열처리 방식과 기존 CORD 공정 및 개선된 제염 공정을 통한 콘크리트, 토양에 존재하는 Co, Cs 화학제염 반응 기작 규명, 공침 기술개발
중화작용에 따른 제염효율 비교
실제 콘크리트 폐기물 제염 효율비교



2.1 Concrete wastes -Experiments

모의 콘크리트 시료 제작

Table 2. 콘크리트 시료의 비율

Concrete coupon	
Materials	Mass (g)
Water	13
Cement (Portland, type I)	21
Fly ash (Class C)	5
Sand (River sand, $\leq 1\text{mm}$)	37
Crushed rock ($\leq 20\text{mm}$)	24
Total	100

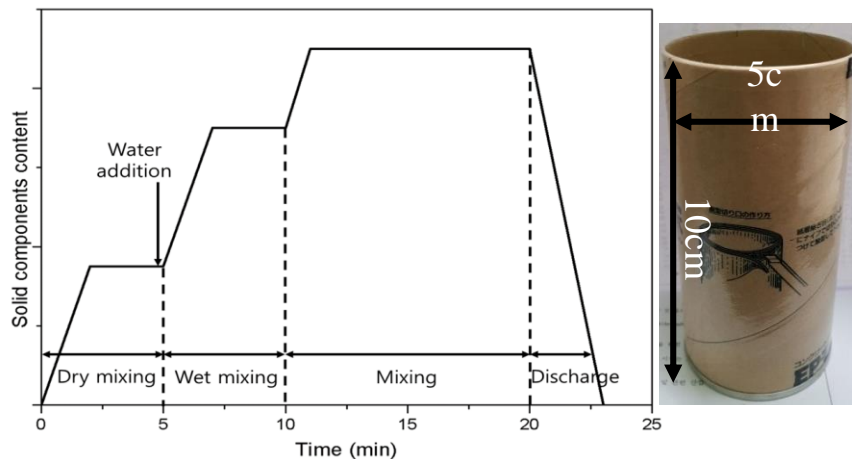


Fig. 2. 콘크리트 시료의 mixing 과정

- **Curing time:** 5 days (28) in the desiccator under the moisture content (80-100 % RH)
- **Concrete coupon size:** 5cm x 4cm
- **Final concrete mass:** 98g

2.1 Concrete wastes -Experiments

모의 콘크리트 시료에 Co, Cs spiking

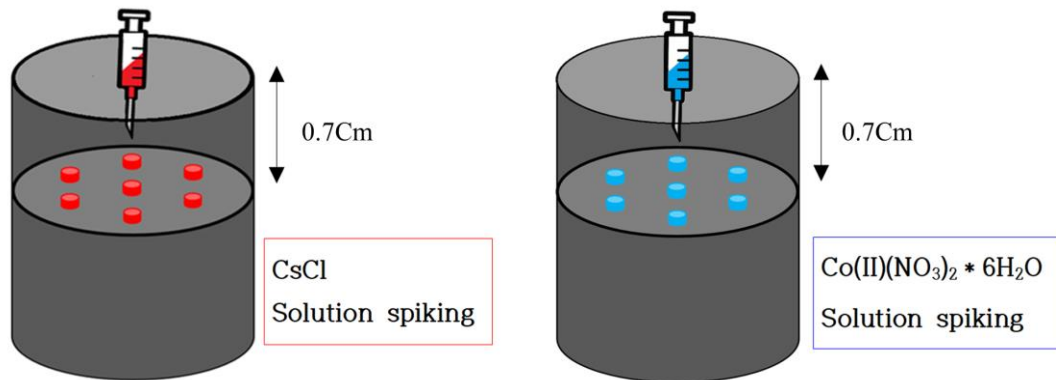


Fig. 3. Co & Cs spiking 에 대한 모식도

Co, Cs spiking 조건

- Surrogated stable Co and Cs
- $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, CsCl : 10ppm
- Spiking time: 40 minutes

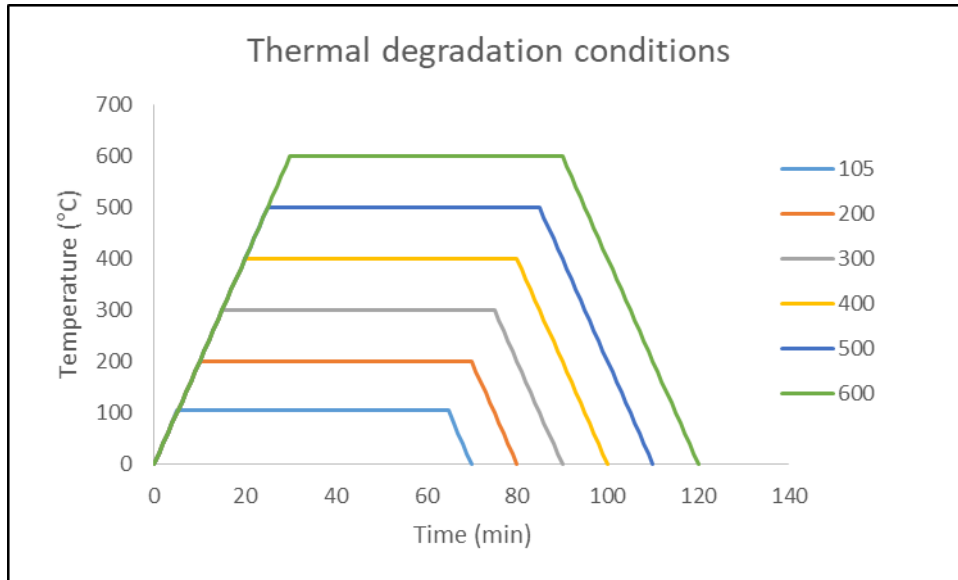
• Concentrations (digestion)

	Co(mg/kg)	Cs(mg/kg)
Cement	3.96	0.65
Fly ash	1.26	0.26
Sand	1.17	0.42



2.1 Concrete wastes -Experiments

Thermal degradation 조건



- 열처리 온도: 105°C, 200°C, 300°C, 400°C, 500°C, & 600°C
- Dwelling time:** 대기 조건에서 한시간
(After 1hour, samples were cooled at RT)
- Crush the concrete samples after degradation to make the cement paste

Fig. 3. Thermal degradation conditions with various temperature



2.2 Concrete wastes -Results

모의 콘크리트 시료와 화학적 조성

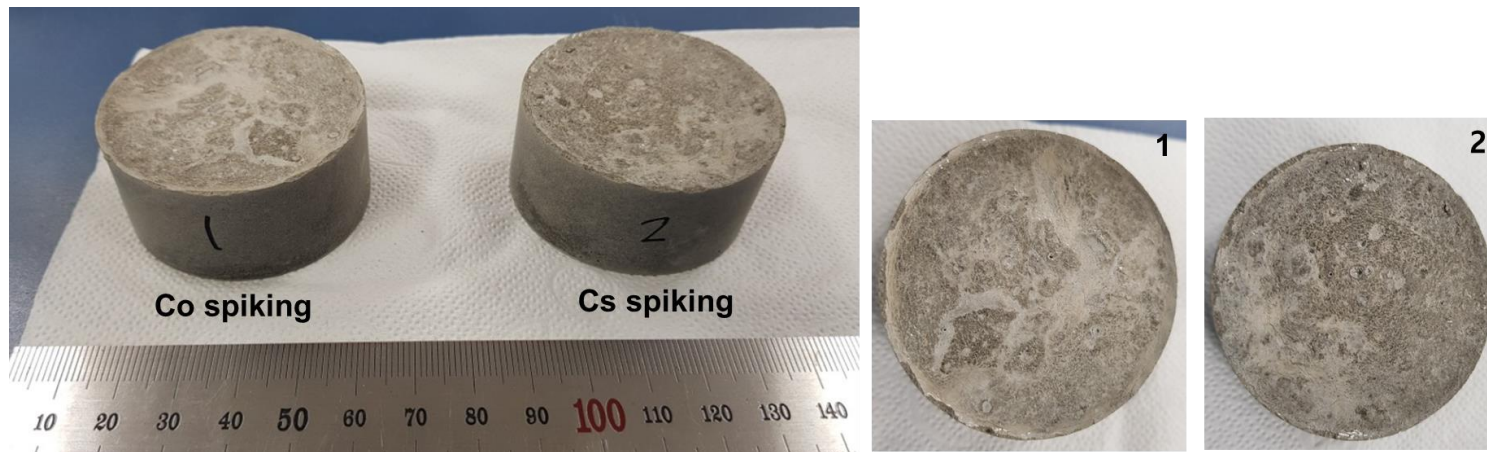


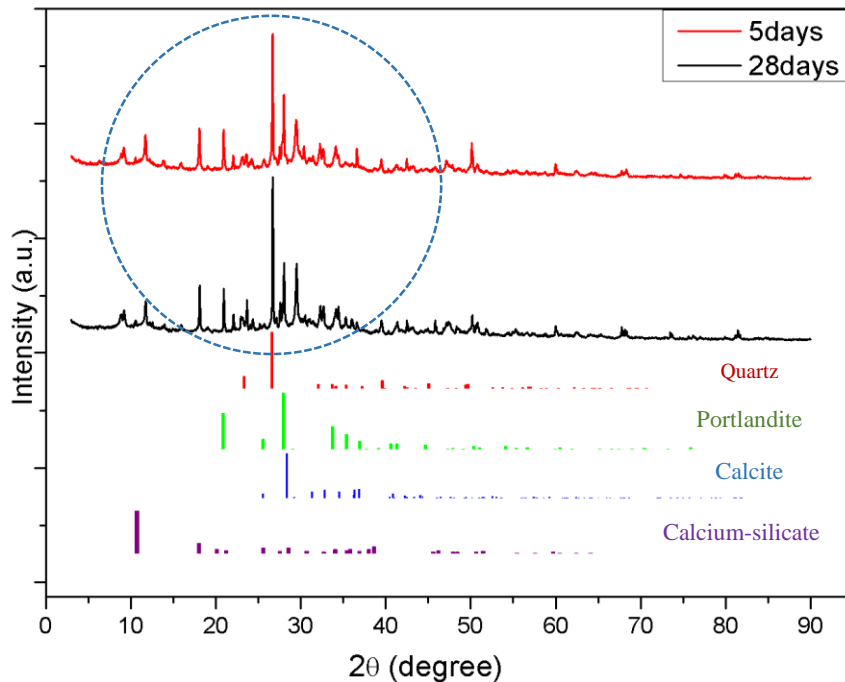
Fig. 4. Co and Cs spiked original concrete coupons.

Chemical composition by XRF

	SiO ₂	CaO	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	K ₂ O	Na ₂ O	MgO	SO ₃
Cement	20.21%	63.61%	5.0%	3.56%	1.05%	0%	2.19%	2.39%
Sand	77.95%	6.58%	6.89%	1.56%	2.83%	1.10%	0.58%	0.04%
Fly ash	42.01%	23.60%	18.60%	4.0%	1.12%	1.66%	2.31%	4.12%
Concrete	46.30%	29.52%	9.90%	4.56%	2.48%	1.79%	1.31%	0.99%

2.2 Concrete wastes -Results

Curing time에 따른 XRD DATA



- XRD peaks show that major minerals are quartz (SiO_2), portlandite (Ca(OH)_2), Calcium-silicate and calcite (CaCO_3).
- Similar mineral pattern (5days, 28days)

Fig. 5. XRD patterns of concrete coupons with different curing date.



2.2 Concrete wastes -Results

콘크리트 열화에 따른 변화 관찰

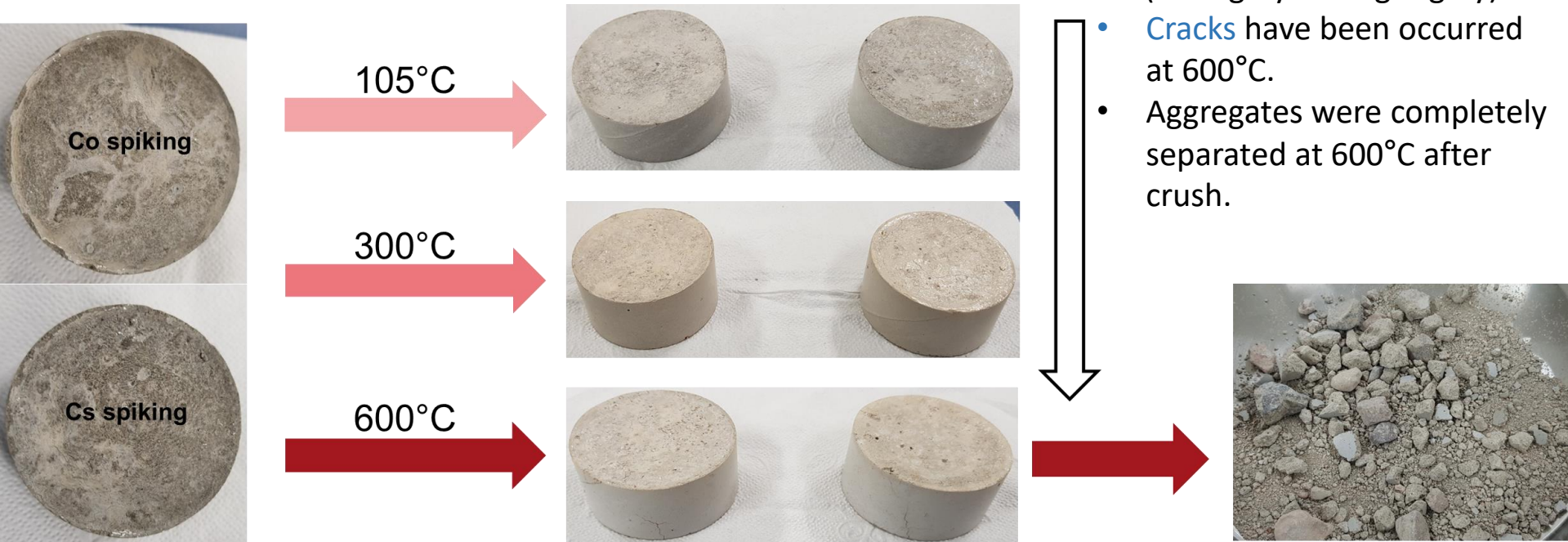
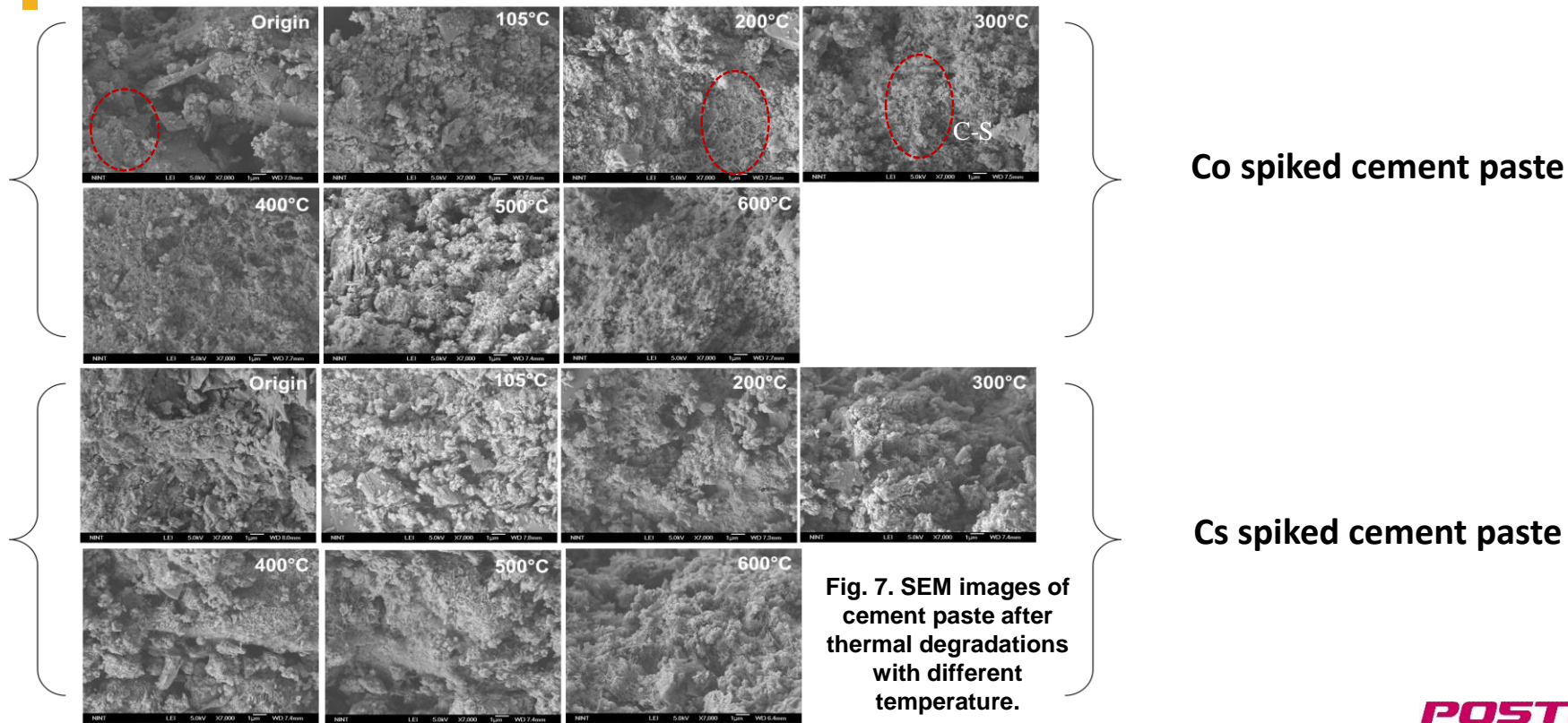


Fig. 6. Color and appearance changes of the concrete coupons after thermal degradations with various temperature.



2.2 Concrete wastes -Results

SEM images





2.2 Concrete wastes -Results

FT-IR and Mass loss

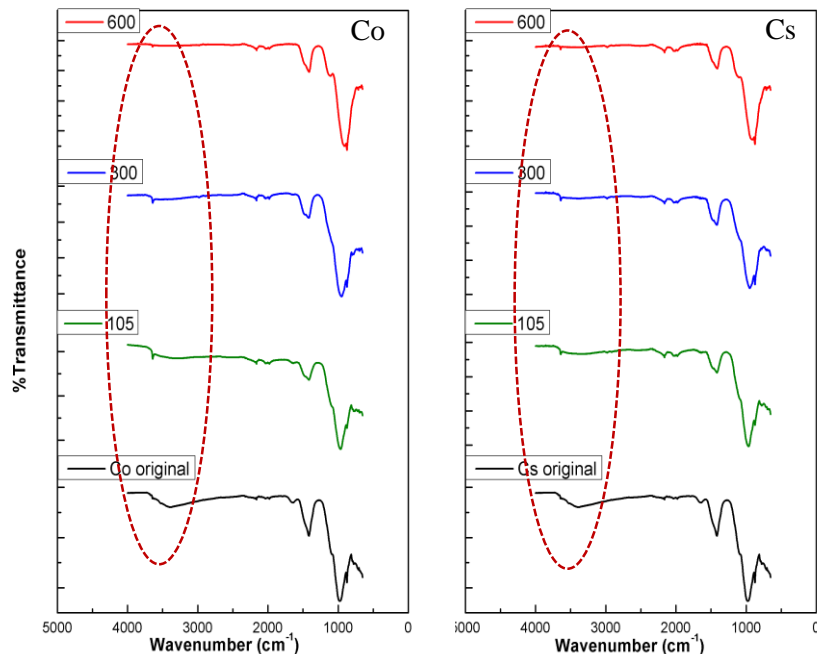


Fig. 8. FT-IR results of cement paste after thermal degradations with different temperature.

- OH⁻ vibrations at 3640cm⁻¹ for portlandite decreased with increasing temperatures and disappeared above 600°C.
- 95% of the contained water in initial concrete sample was evaporated above 300°C condition from sorbed water.

Table 3. 온도에 따른 콘크리트 시료 질량 소실량 (물의 초기 질량:13g)

Temperature (°C)	Mass loss (g)	
	Co concrete	Cs concrete
105	9.4	9.9
200	11.2	11.0
300	11.7	11.8
400	12.6	12.6
500	13.0	13.3
600	13.4	14.0

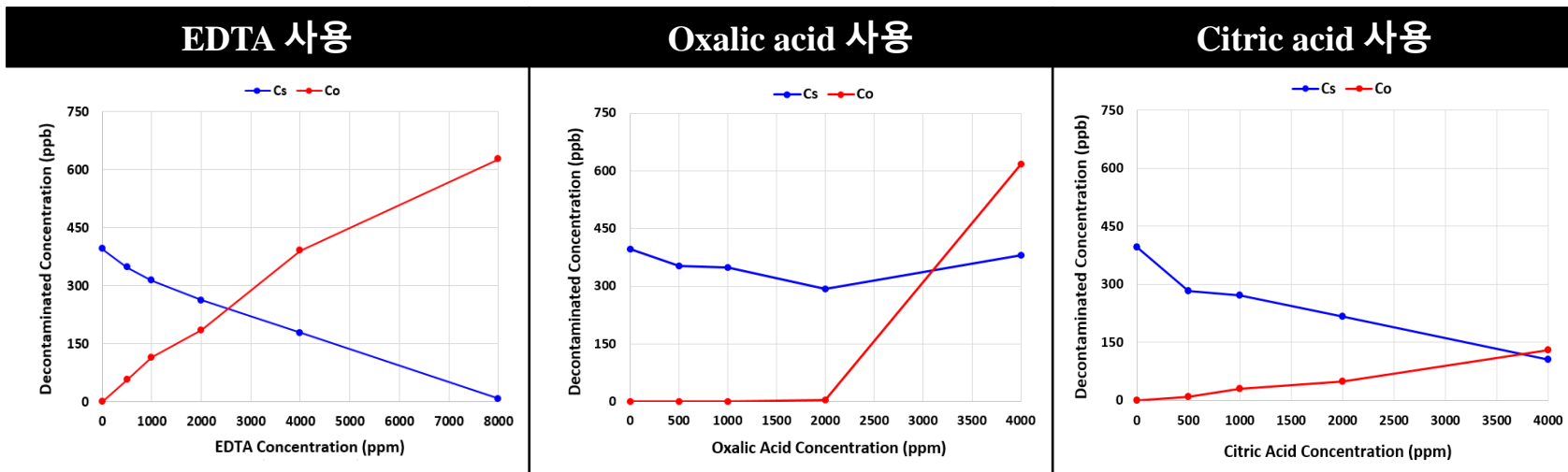


2.2 Concrete wastes -Results

콘크리트 시료 제염

- 일반적으로 널리 쓰이는 EDTA, Oxalic acid, Citric acid를 사용하여 제염 실험 수행
- 제염용액 농도 (500, 1000, 2000, 4000 ppm) 를 이용 하였으며, 실험 이후, ICP-MS 를 통해 결과값 도출
- 콘크리트는 열화하여 1mm 이하로 분쇄함, Batch 실험 시간 : 48 hours

Table 4. 제염제에 따른 콘크리트 시료 내의 Co, Cs 의 제염결과





3. Soil wastes

토양 시료 합성

- 토양 흡착을 기반으로 하는 회분식 흡착 실험법 [ASTM D4646-16](#)과 [US EPA/530/SW-87/006F](#)을 참조
- ASTM D4646-16은 비휘발성 유기물질 및 무기물질, 그 중에서도 특히 지질을 구성하는 다양한 흡과 침전물의 **흡착 경향성 및 흡착계수를 구하는 데에 주로 사용되는 방법**
- 토양은 한울 원자력발전소 내에 존재하는 토양시료채취
- 10mg/L의 $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 와 CsCl 용액과 토양:용액의 비율(0.5g/10mL)의 조건으로 회분식 흡착 실험을 7일간 실시
- Centrifuge 를 실시해 상청액과 시료를 분리하였으며, 필터링 후, ICP-MS 를 통해 결과값 도출
- **흡착능 계산**

$$\text{Sorption Capacity} \left(\frac{\text{mg}}{\text{g}} \right) = (C_i - C_e) \times \frac{V}{M}$$

C_e (mg/L): 상청액 내 타겟(Co, Cs) 핵종의 농도, C_i (mg/L): 타겟(Co, Cs) 핵종의 초기 농도, V: 용액의 부피, M: 토양의 질량

Table 5. 회분식 흡착 실험 결과

Sorbent	Co: Sorption capacity(mg/g)	Cs: Sorption capacity(mg/g)
토양	0.24	0.22



Summary

- 열적/기계화학적 방법을 통한 콘크리트 폐기물 분리 기술 개발
- 화학적 제염방법을 통한 콘크리트 및 토양 폐기물 저감 기술 개발
- 미생물을 활용한 토양 폐기물 처리 기술 개발 (4세부과제)



기대효과





Acknowledgement



This project described was supported by Advanced Nuclear Environment Research Center (ANERC) from the National Research Foundation of Korea (NRF), NRF-2017M2B2B1072374 and NRF-2017M2B2B107 2404.

2017년도 원자력연구개발사업 (원자력연구기반확충사업) 선정
- 원자력환경 선진연구센터



Thank you