

황사빗물의 영향에 의한 방사성 폐기물
시멘트 고화체의 침출특성 분석

Leaching Characteristic Analysis of Cement Solidified Radioactive Waste
Attached by Yellow Sand Rain

김혜진, 이수홍, 황주호
경희대학교
이재민
고려공업검사(주)

요 약

본 논문에서는 황사빗물이 중·저준위 방사성 폐기물 시멘트 고화체에 미치는 영향을 알아보았다. 실험은 ANS 16.1 실험법을 채택하였다. Co 핵종을 포함한 시멘트 고화체를 제작한 후, 대기 중 황사성분의 질량농도를 이용해 침출수의 부피, 이온 및 금속의 농도 등을 결정한다. 실험을 위해 대기 중 황사 부하량이나 강수에 포함되는 황사성분의 양, 처분장의 면적 등은 적합한 가정을 통해 결정하였다. 본 논문에서는 황사의 특성에 대해 간략히 소개하고 침출 실험의 준비과정으로 실험 조건을 결정한 후에, 90일간의 침출실험을 통해 나온 결과로 황사빗물에 의한 시멘트 고화체의 영향을 평가·분석하였다.

Abstract

With a recent public concern rising on the radioactive waste, it is disclosed that the problem is more serious than expected. This research has been conducted to find effects of yellow sandy rainwaters on the solidified cement of mid-and-low level radioactive waste. The ANS 16.1 standard test method was chosen for this leaching experiment.

Make a cement solidified radioactive waste that contains Co nuclide, and fabricate it for over 28 days. Then, decide on the volume of leaching water and the concentration of ion and metal in leachate from the mass concentration of yellow sands in atmosphere.

In this paper, we have taken a short look at characteristics of yellow sand. Before going into the leaching experiment, we decided experimental conditions first. Then, it was evaluated and analyzed how sandy rainfalls have impact on the cement solidified radioactive waste based on data from 90 days of leaching experiment.

I. 서 론

2001년 겨울에 발생한 황사현상은 동해안을 제외한 전국 대부분 지역에서 진행되어 더 이상 황사가 봄철의 문제만이 아니라는 것을 시사했다. 또한 최근 몇 년간 황사 발생일수와 먼지 농도를

조사한 결과 그 수치가 점점 증가하고 있어 황사가 심각한 상황에 이르렀고, 앞으로 그 정도가 더 심해질 것이라고 짐작할 수 있다.

특히 매년 7~8%의 빠른 경제성장률을 보이고 있는 중국의 공업화로 인해 발생한 여러 중금속들과 이온들이 황사에 포함되어 우리나라의 산업·공업적 측면에서 볼 때 심각한 피해를 낳고 있다. 특히 SO_4^{2-} , Cl , Mg^{2+} , NO_3 , Na^+ , Ca^{2+} 등의 이온이 시멘트의 건전성에 영향을 미쳐 건축구조물 등의 파손에 주범이 되고 있다.^[1]

한편 원자력 발전소 내 임시저장소에 저장되어 있는 중·저준위 폐기물 처분시설 및 고화체의 상당량이 시멘트로 이루어져 있다. 황사가 시멘트에 악영향을 미친다면 시멘트 고화체의 내구성에도 어느 정도 심각한 영향을 미칠 가능성도 있다는 점을 짐작할 수 있다. 특히 황사가 섞인 빗물에 의해 침수·침출 현상이 가속되며 시멘트 구조물의 내구성의 저하가 심화된다면 이는 폐기물 내에 있는 방사성 물질의 누출과 직접적으로 관련되고 이는 매우 심각한 사건이 아닐 수 없다. 더구나 최근 방사성 폐기물 처분장의 건설에 대해 사회적으로 많은 논란이 일고 있어 황사가 미치는 시멘트 내구성의 영향에 대한 연구의 필요성이 시급하다고 하겠다.

본 연구는 황사의 특성에 관한 조사를 통하여 시멘트의 내구성에 영향을 미치는 황사의 이온 및 중금속 성분을 토대로 한 모의 황사비를 제작, 이를 이용해 모의 시멘트 고화체의 침수 및 침출실험을 통해 황사빗물에 의한 방사성 폐기물 시멘트 고화체의 침출특성 분석에 그 목적을 둔다.

II. 본 론

1. 우리나라의 황사 현상

황사는 노란 빛깔의 모래 또는 중국 북부나 몽골 지방의 황토가 바람에 날려 하늘에 누렇게 끼는 현상을 말한다.^[7]

최근 들어 황사 발생일수가 점차 늘어나고 그에 따른 피해도 급증하고 있어 황사에 대한 관심이 증가하고 있다. 우리나라 10개 관측소 중 가장 황사 발생일수가 많았던 서울시 잠실에서 2002년 3, 4월 황사 발생일에 측정된 황사 주요성분의 총 질량농도를 표 1으로 나타내었다. 여기에서는 주로 시멘트의 건전성에 영향을 줄 수 있는 성분들을 나열했으며, 건전성에 영향을 미치나 너무 그 수치가 적은 성분들은 제외하였다. 또한 평소의 대기에도 황사성분이 존재함을 감안할 때 황사 발생일의 총 질량농도는 이보다 더 큰 수치임을 알 수 있으나 황사지칭 먼지량이 $150 \mu g/m^3$ 이상인 것을 감안, 황사 발생일만을 고려하여 계산된 수치임을 밝힌다.

표1. 2002년 3,4월 측정된 황사 주요성분의 Total 질량농도^[6]

단위 [$\mu g/m^3$]

이온	SO_4^{2-}	NO_3	Cl	Mg^{2+}	Ca^{2+}	Na^+
	131.79	81.46	37.36	4.33	33.27	32.9
농도비	1	0.62	0.28	0.03	0.25	0.25

시멘트 고화체 내부에는 미세 기공(micropore) 들이 존재한다. 이 미세 기공으로 황사성분을 포함한 빗물이 스며든다고 가정할 때 황사의 성분 중 SO_4^{2-} , Cl , Mg^{2+} , CO_3^{2-} , Na^+ 등과 시멘트 구성성분인 Ca^{2+} 와 반응하여 결정화가 이루어진다. 이 때에 결정의 크기가 미세기공의 크기보다 커지면 시멘트 고화체 내부에 고압이 걸리게 되어 결국 시멘트 고화체의 균열을 초래한다.^[4]

본 연구는 황사의 주요이온이 시멘트의 침출현상에 미치는 영향의 유무를 분석하기 위한 것으로 다음과 같은 보수적인 가정을 설정하였다. 황사의 영향에 의한 시멘트 고화체의 침출 특성을 알아보기 위한 실험이므로 지난 35년 간 황사 발생일수가 가장 많았던 서울시를 지역으로 선정한다.

다. 황사의 영향에 의한 시멘트 고화체의 침출특성을 알아보기 위한 실험이므로 지난 35년 간 황사 발생일수가 가장 많았던 서울시를 지역으로 선정한다. 황사빗물이 지하수와 섞였을 시에 농도 변화를 무시하기 위해 황사빗물의 농도는 지하수의 농도와 같다고 가정한다. 대기 중에 부유해 있는 황사 성분이 모두 강수에 포함된다고 가정하고 황사 성분 중 표 1에서 지정한 이온들만 시멘트의 내구성에 영향을 준다고 가정한다. 지하수와 토양의 이동특성은 고려하지 않고, 모의 황사 빗물은 모두 직접 고화체와 접촉한다고 가정한다.

3. 침출 실험법^[1]

이 실험에서는 중·저준위 폐기물 고화체의 방사성 핵종에 대한 보전능력을 평가하는 표준이라고 할 수 있는 ANS 16.1 표준 침출 시험법을 이용하였다. 침출수 교환주기는 2h, 7h, 1d, 2d, 3d, 4d, 5d, 19d, 47d, 90d이다. 미국 NRC에서는 폐기물 내에 포함된 모든 방사성 핵종에 대하여 침출 지수가 6보다 커야함을 권고하고 있다.

누적 침출율이 20 % 이하인 실험에서는 다음과 같은 유효확산계수를 적용한다

$$D_e = \pi \left(\frac{a_n / A_0}{t_n - t_{n-1}} \right)^2 \left(\frac{V}{S} \right)^2 T$$

여기서 a_n = 침출 간격 n 동안 유출된 방사성 핵종의 방사능

A_0 = 침출시험 초기에 시편에 있는 방사성 핵종의 총 방사능

S = 시편의 노출 표면적, cm^2

V = 시편의 부피, cm^3

t_n = 침출수의 교환주기, d

$T = \left[\frac{(t_n^{1/2} + t_{n-1}^{1/2})}{2} \right]^2$, 침출간격의 평균시간, d

D_e = 유효확산계수, cm^2/s

각각의 시편으로부터 유효확산계수가 결정되면 다음과 같이 정의된 침출지수(L_i)가 구해진다.

$$L_i = \frac{1}{10} \sum_{n=1}^{10} [\log(\beta / D_{ei})]_n$$

여기서 β 는 $1cm^2/s$ 로 정의된 상수

D_{ei} 는 시험데이터로부터 계산된 방사성 핵종 i 의 유효확산계수이다.

이와 같은 침출지수는 폐기물 고화체의 성능 요건(performance criteria)을 정의하는데 이용된다.

4. 실험방법

모의 시멘트 고화체 제작은 한일 포틀랜드 1종 시멘트와 Co, Cs 분말을 이용하여 제작하였다. 이 때 물과 시멘트의 비는 0.4로써, 시멘트 혼합기를 이용하여 시멘트를 섞은 뒤 지름 5cm, 높이 10cm의 12개의 실린더 모양 파이프에 담아 제작한다. 이 때 양생기간은 28일 이상으로 한다.

중류수에 SO_4^{2-} , Cl^- , Mg^{2+} , NO_3^- , Ca^{2+} , Na^+ 이온을 넣어 모의 황사빗물을 제조한다. 그 농도는 강수의 부피 186600 ml와 침출수의 부피 1960 ml의 비를 이용해 대기 중의 이온 및 금속농도를 침출수에 포함할 농도로 계산하였다. 그 값은 다음과 같다

이온	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	Ca ²⁺	Na ⁺	Mg ²⁺
대기질량농도의 이온% ^[9]	2.39 %	1.48 %	0.67 %	0.60 %	0.60 %	0.07 %
대기에서의 양(g)	4460	2762	1250	1120	1120	131
침출수에서의 양(g)	46.85	29.01	13.13	11.76	11.76	1.37

침출수에 들어갈 이온의 양을 결정하는 부분에서도 대기 중의 황사성분이 빗물에 100% 섞여 들어간다는 보수적 가정을 이용해 가능한 수치의 최대값을 사용하였다.

각각 3개의 시편을 모의 황사 빗물과 증류수에 넣고 90일 동안 정해진 시간에 침출수를 교환해 주면서 침출실험을 한다.

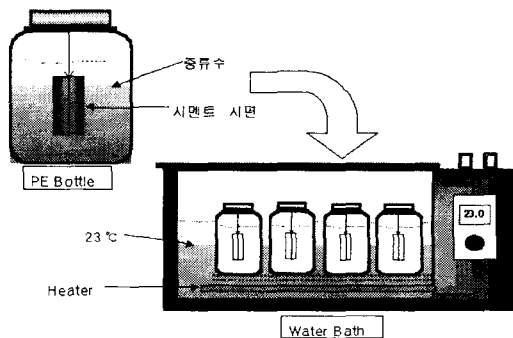


그림 1. 시멘트 시편 침출 시험 장치 개략도

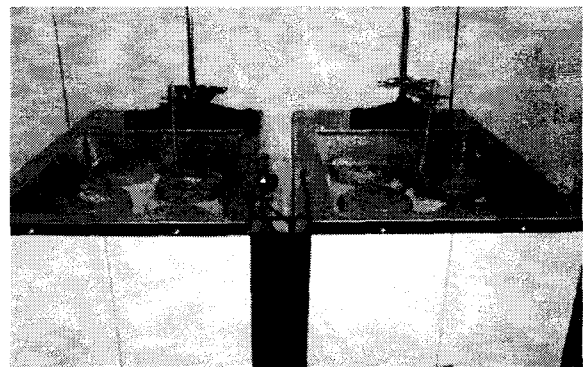


그림 2. 침출실험 수행상황

실험결과 분석은 경희대 기기분석실에 있는 ICPS(Inductive coupled Plasma Spectrometer) 를 이용해 Co의 침출 농도 변화를 확인한다.

5. 실험 결과

(1)고화체의 비교

다음 그림은 실험 전 고화체와 실험 후 고화체를 비교한 것이다. 실험 전 고화체나 증류수에 침수되었던 고화체에 비해 모의 황사빗물에 90일 동안 침수되었던 고화체의 표면이 눈에 띄게 거칠어져 있었다.

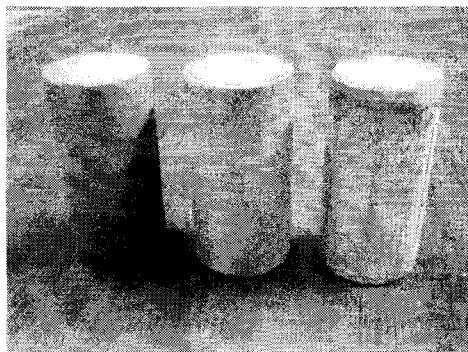


그림 3. 왼쪽부터 실험 전 고화체, 증류수 침수 고화체, 모의 황사빗물 침수 고화체

다음 그림은 Scanning Electron Microscope (주사형 전자현미경)으로 시멘트 고화체를 찍은 사진이다

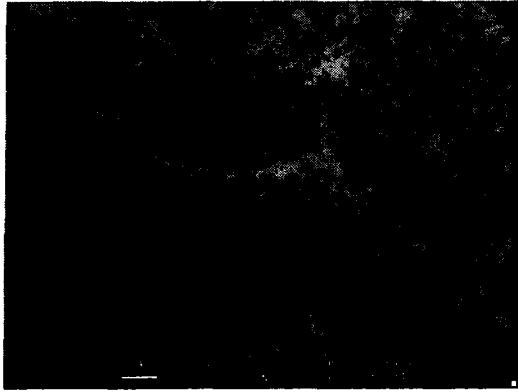


그림 4. 실험 전 고화체의 단면

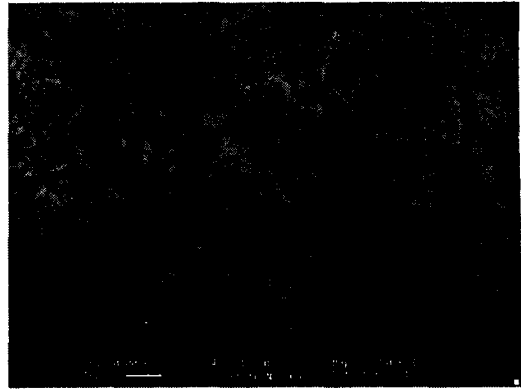


그림 5. 증류수 침수 고화체의 단면

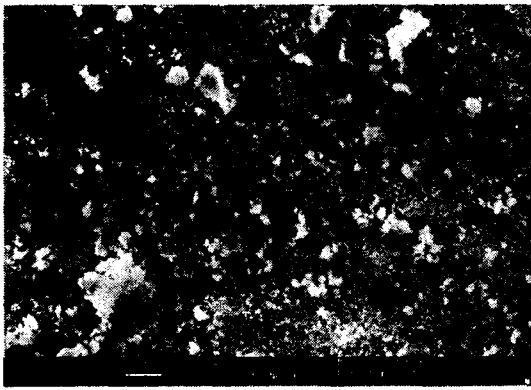


그림 6. 모의황사빗물 침수 고화체의 단면



그림 7. 모의황사빗물 침수 고화체의 표면

실험 전이나 증류수 침수 고화체에 비해 모의 황사 빗물 침수 고화체의 단면 사진을 통해 시멘트의 구성성분의 결합이 많이 약해져 있는 것을 볼 수 있으며, 특히 모의황사빗물 침수 고화체의 표면은 그 정도가 심한 것을 볼 수 있다. 이로써 모의 황사 빗물이 시멘트의 내구성에 심각한 영향을 미치는 것을 알 수 있다.

(2) 유효확산계수와 누적침출율

90일간의 침출 실험 결과 Co 핵종의 누적 침출율은 다음과 같은 양상을 보였다.

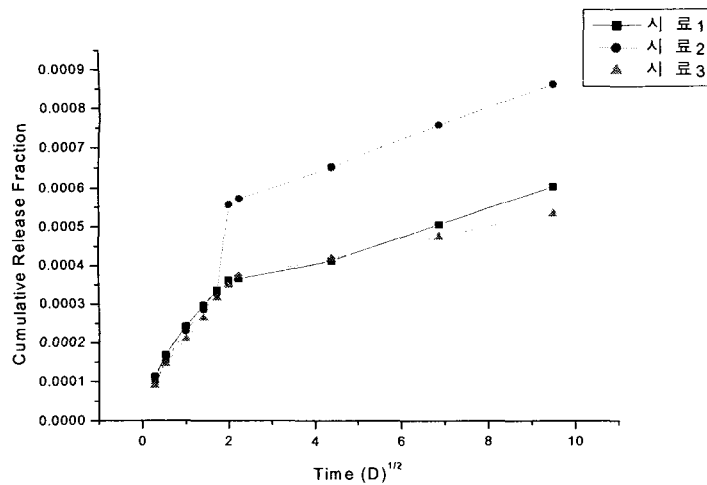


그림 8. Co 핵종의 누적 침출율

그러나, Co 핵종의 침출양상에서 유추할 수 있듯이 5d 이전의 결과는 표면효과가 작용하기 때문에 고화체 표면에서의 초기 방출의 상수항인 'β'값이 추가적으로 필요하다. 결국 최종적으로 반무한 매질에서의 누적침출분율은 다음과 같은 식으로 표현된다.

$$CRF = \frac{S}{V} \times 2 \left(\frac{DT}{\pi} \right) + \beta$$

where RF = Cumulative release fraction

V = Surface area to volume ratio of waste form(cm⁻¹)

D = Effective diffusivity(cm²/s)

t = Time(s)

β = y intercept or surface release

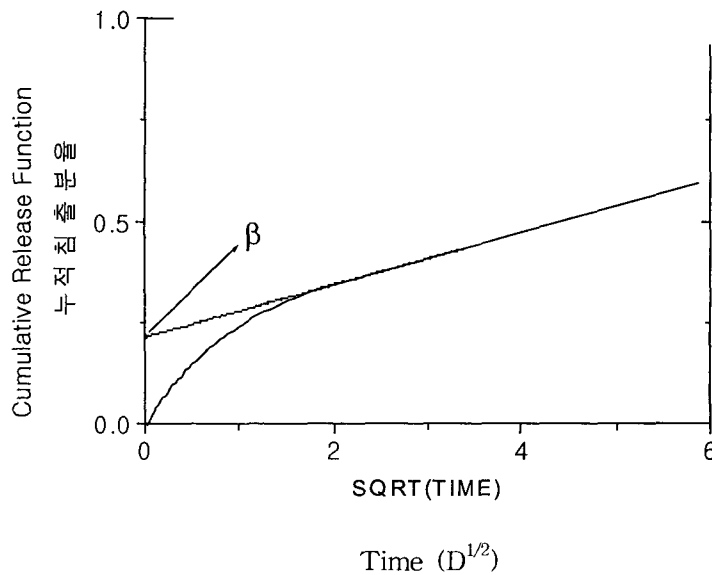


그림9 . 표면효과의 영향을 받은 침출곡선의 일반적인 경향

이처럼 β 값을 이용하여 계산한 평균 D_e 값은 8.12693E-11 cm²/s 이고, Li 값은 10.1944로 나왔다. 이는 기존에 발표되었던 논문 [2]에서 나온 D_e 값보다 크고 Li 값보다 작은 수치이다. 이러한 차이가 나타나는 주요 원인은 고화체의 고화 정도 및 폐기물 구성에 따른 차이로 판단된다. 비록 보수적인 가정을 설정해 제조한 모의 황사빛물을 이용한 침출실험이지만 이는 황사비가 방사성 폐기물 시멘트 고화체에 얼마나 심각한 영향을 미칠 수 있는가를 보여주는 것이라 할 수 있다.

III. 결 론

본 연구는 최근 점점 심각해지고 있는 황사가 강수에 포함되었을 때, 황사빛물이 중·저준위 폐기물 고화체와 접촉 시 어떠한 영향을 미치는가를 알아보기 위한 실험이다. 실험의 주요내용은 시멘트에 Co핵종을 섞어 28일의 양생기간을 거쳐 제작한 모의 시멘트 고화체를 보수적인 가정을 통해 제작한 모의 황사빛물과 증류수에 넣고 각각 침수 및 침출실험을 하였을 때 나타나는 결과를 분석하는 것이다. 실험 전 후의 시멘트 고화체의 단면을 비교해 볼 때, 실험전과 증류수 침수 고화체는 비슷한 양상을 보였으나 모의 황사 빛물 침수 고화체는 그 구조적 결합이 많이 약해져 있

음을 볼 수 있었다. 특히 모의 황사 빗물 침수 고화체의 단면과 표면을 비교해 보면 시멘트 고화체의 표면의 구조가 많이 파괴되어 있음을 알 수 있다. 다음으로 방사성 폐기물 처분 시 처분장의 기능 평가 및 폐기물 고화체의 안정성 평가의 주요 항목인 침출지수와 유효확산계수를 구한다. 모의 황사 빗물에서 Co 핵종의 유효확산계수는 $8.12693E-11 \text{ cm}^2/\text{s}$ 으로 기존에 발표된 실험 결과보다 비슷하거나 대체적으로 더 큰 수치이며, 침출지수는 10.1944으로 기존에 발표된 논문에서의 수치보다 작게 나왔다. 이는 다른 실험에서보다 Co 핵종이 더 빨리 침출된다는 것을 의미한다. 실고화체의 경우 방사성 핵종이 빠져나오는 것이므로 상당히 위험할 것이며 그에 따른 대책이 시급한 상황이다. 비교 대상으로 실험한 증류수에서는 Co 핵종이 검출되지 않았다. 이는 증류수가 시멘트에 별다른 영향을 미치지 않거나, 또는 그 수치가 너무 적어서 ICP-S의 검출한도보다 낮은 것으로 판단된다.

또한, 일반적으로 황(S)에 대한 영향 평가 시 보통 100일에서 300일에 걸친 장기적 실험을 하는데 비해 본 연구에서는 90일의 침수 실험만으로도 상당한 영향이 발견되었다. 또, 황의 농도를 높게 잡아주는 것이 일반적이지만, 침출수내의 황의 농도를 높게 할 경우에 황사에 포함되는 기타 이온에 대해서도 같은 비율을 적용해야 한다. 이 경우 용해도의 문제와, ICP-S로 분석할 때에 S나 Na 이온 농도가 높으면 잘 검출되지 않는다는 점에 착안하여 황의 이온 농도를 적게 잡았음에도 불구하고 De값이 크게 나왔다. 이로 미루어 볼 때 S를 많이 포함하고 있는 황사에 대한 영향 평가가 필요하며, 향후 처분시설 운영 시 운영기간을 고려해야 할 것으로 보인다.

IV. 감사의 글

본 연구는 과학기술부 원자력 인력양성사업 학부생 논문 연구 지원 분야의 일환으로 수행되었습니다.

V. 참고문헌

1. 황주호 외 5명, 원전 발생 고화체의 회분식 침출특성 관련 실험(최종보고서), 기초전력공학공동연구소, 2002
2. 박헌휘 외, 고화체 특성 규명 연구, 과학기술처, 1994
3. 정용승 외 4명, 1997~2000년에 관측된 황사의 농도와 부하량 및 시정: 위성과 기상분석, 한국기상학회지, 2000
4. 황주호 외 6명, 중·저준위 방사성폐기물 처분시설 구조재의 장기성능평가(1차)최종보고서, 한국원자력안전기술원, 1997
5. 기상청 홈페이지 www.kma.go.kr
6. 국립 환경연구원 홈페이지 www.nier.go.kr
7. 황사관련 홈페이지 yellow.metri.re.kr