

방사성콘크리트에 대한 복합제염방법 도출

김계남, 최왕규, 민병연, 박정우, 이근우, 정운수
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
kimsum@kaeri.re.kr

1. 서론

국내의 원자력시설 운영 시 또는 원자력시설 해체 시 다량의 방사성 콘크리트가 발생되고 있고, 상당량의 콘크리트폐기물이 원자력시설 폐기물저장고에 보관되어오고 있다. 이 방사성 콘크리트의 주 핵종은 코발트와 세슘이며, 오염농도는 3Bq/g 이하이다. 그러므로 이 방사성콘크리트를 제염하여 자체처분 기준농도이하로 낮추어 자체 처분한다면, 중 저준위 방사성처분장에 처분하는 비용 보다 매우 저렴하게 처분할 수 있다. 본 연구에서는 한국원자력연구원 폐기물저장고에 보관되어 있는 방사성콘크리트로부터 방사성핵종을 제거하여 자체 처분할 수 있는 오염농도로 저하시키기 위한 세척기술과 동전기기술을 복합한 복합제염기술을 개발하였다.

2. 실험 및 결과

원자력연구원 및 원자력발전소 방사성폐기물 저장고에는 20~50cm 크기로 파쇄한 콘크리트를 200L 방사성폐기물 드럼에 보관하고 있다. 방사능으로 오염되지 않은 콘크리트를 선별하여 먼저, 이 콘크리트를 파쇄기를 사용하여 0.5 cm이하로 잘게 파쇄하였다(Fig. 1). 파쇄된 콘크리트의 입도분포도는 Fig. 2와 같다. 다음으로 모의오염 콘크리트입자를 만들기 위해 파쇄된 콘크리트를 0.01M의 코발트와 세슘용액과 혼합한 후 Shaking water bath 내에서 흔들면서 혼합시켜 주었고, 일주일이상 건조시켜 거의 균등한 농도를 가진 모의오염 콘크리트를 만들었다.

동전기제염만으로는 콘크리트로부터 코발트를 제거하는 것은 불가능하므로 동전기실험 전에 염산을 사용하여 콘크리트를 세척하여 콘크리트 구성하는 시멘트의 주성분인 CaCO_3 를 CO_2 로 분해하여 콘크리트의 pH를 4이하로 저하시킨 후 동전기제염 실험을 수행했다. 즉, 먼저 3.0M의 염산을 1.5ml/g 비율로 모의오염 콘크리트와 혼합조에서 혼합하고 4시간 동안 scrubbing시켰다. 이때, 콘크리트 내의 시멘트는 염산과 반응하여 CO_2 로 분해되면서 콘크리트 입자의 pH가 4이하로 감소되었다. 혼합물로부터 염산용액을 제거하고 콘크리트입자 만을 앞에서 사용한 1L규모 동전기장치에 넣고 0.01 M 초산을 전해용액으로 사용하고 전압을 4 V/cm로 가하여 동전기제염실험을 14.83일간(세척시간 포함 시 : 15일) 수행했다. 이때, 앞의 실험과는 달리 전극의 위치를 토양 동전기실험 때와 같이 왼쪽을 양극으로 오른쪽을 음극으로 정했다. 왜냐하면, 염산으로 전처리 된 콘크리트 입자의 pH가 낮아져 콘크리트입자의 제타포텐셜이 음으로 바뀌어 전기삼투에 의한 콘크리트셀 내의 전해용액이 음극으로 이동했기 때문이다. 1L규모 동전기장치 콘크리트셀에 염산에 의해 pH가 4 이하로 낮아진 콘크리트 1,600g을 넣고 동전기 제염실험을 수행했다. 이때 주기적으로 음전극실로부터 방출되는 침출용액 방출량과 침출용액 농도를 AA로 측정했다. 또한, 음전극실의 침출전해용액의 pH 상승을 낮추기 위해 초산을 주입하였다. 15일 간의 복합제염 실험을 마친 후 콘크리트셀 내의 콘크리트를 6등분하여 약 10g 씩 샘플링하여 건조시켰다. 시멘트 내의 석회석과 염산의 반응식은 다음과 같다.



앞의 실험결과 동전기제염만으로는 콘크리트로부터 코발트를 제거하는 것은 불가능하므로 전처리 개념으로 염산을 사용하여 콘크리트를 세척하여 콘크리트 내의 시멘트를 CO_2 로 분해제거한 후 콘크리트 입자의 pH를 측정한 결과 3.7이었다. 이와 같이 콘크리트의 pH가 6이하이므로 동전기방법에 의한 코발트 제거가 가능하리라 사료되었다. 이 혼합물로부터 염산폐액을 분리하고 콘크리트입자만을 앞에서 사용한 1L규모 동전기장치의 콘크리트 셀에 넣어 동전기제염 실험을 14.83일간 수행한 결과 Fig. 1과 같이 코발트이온과 세슘이온은 각각 99.7%와 99.6% 제거되었다. 콘크리트 내의 코발트와 세슘은 염산 세척에 의해 4시간 동안 각각 89.0%와 76.3%제거되었고 동전기제염에 의해 제거량이 서서히 증가했다.

즉 세척방법과 동전기방법에 의한 복합제염 실험 5일 후에는 각각 98.5%와 98.1%가 제거되었고 15일 후에는 99.7%와 99.6% 제거되었다. 이와 같이 동전기제염에 의해 코발트와 세슘은 서서히 제거되었다.

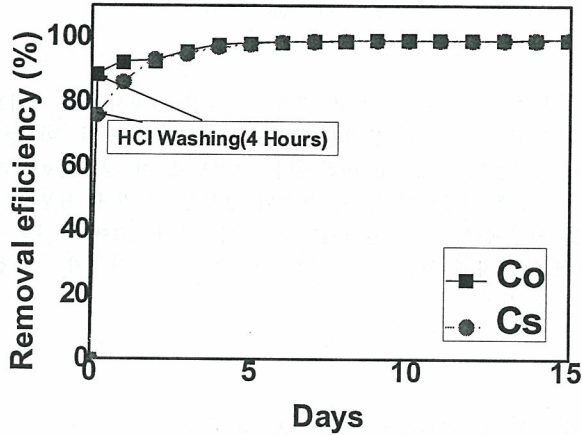


Fig. 1. Total Co^{2+} and Cs^+ removal efficiency with remediation time on using 0.01M acetic acid reagent after washing with 3.0 M hydrochloric acid for 4 hours.

3. 결론

원자력시설에서 발생하는 방사성콘크리트를 제염하기 위해 세척방법과 동전기방법을 복합한 복합제염방법에 의한 제염기술을 개발하였다. 3 M의 염산을 사용하여 콘크리트를 4시간(0.17일) 동안 세척하여 줌으로 콘크리트 내의 시멘트가 CO_2 로 분해 제거되어 콘크리트입자의 pH가 3.7로 낮추어졌고, 콘크리트 내의 코발트와 세슘은 염산세척에 의해 각각 89.0%와 76.3% 제거되었다. 다음으로 콘크리트입자만을 1L규모 동전기장치를 사용하여 동전기제염 실험을 14.83일간 수행한 결과 코발트이온과 세슘이온은 각각 총 99.7%와 99.6% 제거되었다.

REFERENCE

1. K. Popov, I. Glazkova, V.Yachmenev, and A. Nikolayev, "Electrokinetic remediation of concrete: effect of chelating agents," Environmental Pollution, pp. 1-7(2008).
2. M. T. Harris, D. W. Depaoli and M. R. Ally, "Modeling the electrokinetic decontamination of concrete", Separation Science and Technology, 32, pp. 827-848(1997).
3. M. T. Harris, D. W. Depaoli and M. R. Ally, "Investigation of electrokinetic decontamination of concrete", Separation Science and Technology, 32, pp. 387-404(1997).