

플라즈마 아크를 이용한 중·저준위 방사성 폐기물의 유리고화 연구

A Study on the Vitrification Test of Low Level Radioactive Waste Using Plasma Arc Melter System

윤부호, 이상철, 조재학, 최용준, 강동우

두산중공업(주)
경남 창원시 귀곡동 555

요 약

원자력 발전소에서 발생하는 중·저 준위 방사성 폐기물의 유리고화 연구를 위하여 플라즈마 아크 용융로 시스템을 주축으로 하는 실험설비를 건설한 후, 원자력 발전소에서 생산되는 방사성 폐기물과 구성 성분이 비슷한 모의 폐기물을 제조하고 이에 대한 유리고화 및 설비의 성능 실험을 수행하였다. 모의 폐기물의 유리고화에 대한 실험 단계로서는 모의 폐기물을 가연성, 비가연성 및 레진으로 구분한 후 각각에 특정물질을 첨가하여 폐기물을 용융시키고, 이때 발생하는 배기 가스는 첨가된 특정물질을 추적하여 분석하였다.

가연성, 비가연성, 레진 등으로 복합된 혼합 폐기물에 대해서는 특정물질의 첨가없이 실험이 수행되었고, 방사성 물질로서는 Co-60 과 Cs-137 이 가연성 및 비가연성의 모의 폐기물에 실제로 투입되어 실험이 수행되었다.

최종 산출물인 유리고화체에 대한 물리 화학적인 분석은 밀도 2.42 ~ 2.95g/cm³, 압축강도 30 ~ 175Mpa, 미세경도 5.5 ~ 5.8Gpa 이며 침출특성 중 Co 에 대한 침출분율은 1.27×10⁻⁴ ~ 1.08×10⁻³, 침출속도는 4.14×10⁻⁷ ~ 5.53×10⁻⁶ g/m²day 이고 Cs 에 대해서는 침출분율 2.46×10⁻³ ~ 3.23×10⁻², 침출속도 4.58×10⁻⁵ ~ 3.87×10⁻⁴ g/m²day 이었다. 배기체의 경우는 다이옥신과 퓨란이 평균 0.016ng, CO 가 약 20ppm, NO₂ 약 15ppm, SO₂ 약 1.5ppm 으로 모두 환경 기준치 보다 훨씬 낮게 나타났다.

Abstract

For the research of the vitrification of the low-level radioactive wastes produced from nuclear power plants, one pilot plant with plasma arc melter system was built. The tests were done with the surrogate wastes, which were spiked with several metals and were made similar to the real low-level radioactive wastes from nuclear power plants. The steps for the vitrification of the surrogate wastes are follows. First, divide the surrogate wastes as combustible, non-combustible and resin. Second, spike each waste with special materials and melt the waste separately. The offgas was also pick up from special locations in whole system and analyzed.

The compound surrogate waste was treated without any spiking materials. Real radioactive materials, Cs and Co were spiked in combustible and non-combustible surrogate wastes.

The data from the final products (glasses formulation) were follows. Glass density is 2.42 ~ 2.95g/cm³, compressive strength is 30 ~ 175Mpa, micro-hardness is 5.5 ~ 5.8Gpa. The fraction leached for Co is 1.27×10⁻⁴ ~ 1.08×10⁻³ and for Cs is 2.46×10⁻³ ~ 3.23×10⁻². The leach rate for Co is 4.14×10⁻⁷ ~ 5.53×10⁻⁶ g/m²day and for Cs is 4.58×10⁻⁵ ~ 3.87×10⁻⁴ g/m²day. In the case of offgas, dioxin & furan is average 0.016 nano gram, CO is

about 20ppm, NO₂ is about 15ppm and SO₂ is about 1.5ppm. All of these values are below the regulation limits for environmental gas emission.

1. 서론

유리고화라는 말은 어떤 물질을 유리 또는 유리 같은 물체로 전환시키는 과정을 뜻하는 말로서, 이 기술을 방사성 폐기물의 처리에 적용하기 시작한 주된 원인은 산출물의 안정성 및 지속성 그리고 여러 가지 폐기물을 처리하는 과정에 대한 이 기술 자체의 유연성에서 찾아 볼 수 있다. 유리고화 기술을 방사성 폐기물의 처리에 적용해 온 것은 상당히 오래 전의 일이긴 하지만, 주로 원자력 발전소에서 사용하고 나온 핵연료의 재처리 과정에서 발생하는 고준위 폐기물의 처리에 관한 것이었으며, 이에 비하여 중·저 준위 방사성 폐기물에 대한 유리고화 기술의 적용은 최근에 와서야 몇몇 국가에서 연구 수행이 진행되고 있는 실정이다.

중·저 준위 방사성 폐기물의 유리고화에 대한 연구가 이렇게 늦게 시작된 것은 여러 가지 이유가 있겠지만 무엇보다도 폐기물에서 발생하는 방사선의 강도와 반감기가 낮고 짧기 때문에 폐기물을 적당한 장소에 안전하게 매립하거나 장기간 임시 보관하는 것으로서 문제를 쉽게 해결할 수 있었기 때문으로 볼 수 있다. 하지만 지난 수 십 년간 여러 기의 원자력 발전소를 장기간 운행해 온 국가들 중, 특히 국토가 좁고 인구밀도는 높은 한국, 대만, 일본 등의 국가들은 그 동안 누적되어온 중·저 준위 폐기물의 양이 상당량에 이르러서 이에 대한 안전한 장기 처리가 심각한 당면 과제로 대두되고 유리고화의 또 다른 특성인 감용 효과까지 고려할 시 이 기술의 중·저 준위 방사성 폐기물에 대한 적용은 문제의 해결에 최적일 것이라는 기대감을 불러 일으키게 되었다. 그러나 중·저 준위 방사성 폐기물의 유리고화는 고 준위의 경우와는 많은 차이가 있다.

중·저 준위 방사성 폐기물은 처리 대상인 폐기물의 구성이 고 준위의 경우처럼 단순하지 아니하고 복잡 다양하기 때문에, 폐기물들이 유리 또는 유리 같은 물질로 전환되게 하는 데에 상당한 어려움이 따르고, 경우에 따라서는 유리화 자체가 이루어지지 않을 수도 있다. 또 폐기물의 복잡 다양함에 따라 배기체의 종류도 복잡 다양하게 생성되므로 인체나 환경에 유해한 물질이 방출되지 아니하도록 이에 대한 철저한 대비책이 요구된다.

중·저 준위 방사성 폐기물의 유리고화 기술의 연구를 위하여 두산중공업은 국내의 원자력 연구소 내에 Pilot Plant 를 설치하고 원자력 발전소에서 발생하는 폐기물과 조성이 비슷한 모의 폐기물을 제조하여 그에 대한 유리고화 실험을 수행하였다.

2. 유리고화 설비 개요

본 설비(HJ-200)는 중·저 준위 방사능 폐기물의 처리에도 응용이 가능토록 개발된 플라즈마 아크 용융설비로서, 매 시간당 폐기물의 처리 용량은 비가연성 200kg, 가연성 100kg 이며 그림 1 과 같은 시스템으로 이루어져 있다.

유리고화를 시키기 위해서 본 설비에 의하여 처리되는 폐기물은 폐기물이 담긴 드럼으로부터 분리하거나 폐기물을 별도로 재포장하는 것과 같은 사전처리가 없이 투입되며 폐기물의 투입 시에는 Airlock 에 의해서 내외부가 차단된다. 투입된 폐기물 드럼은 분쇄기에 의해서 파쇄된 후 나선형 주입기에 의하여 용융로 안으로 주입되는데 본 설비의 특징은 가연성과 비가연성의 폐기물을 분리하지 않는 상태로 용융 처리가 가능 하다.

용융로는 플라즈마 아크 용융로를 사용하고 있고 이는 두개의 탄소 전극봉에 의해서 플라즈마 아크를 발생시켜 용융로 내부에 유입된 폐기물을 용융시킨다. 용융 시스템 내부에는 용융물의 준

위를 정확히 측정하기 위한 레이저 측정기와 내부 감시 카메라가 설치되어 있어서 다양한 폐기물을 용융특성에 맞추어 운전할 수 있도록 되어 있다. 또한, 고온에서 방사성 물질이나 중금속류의 휘발을 억제하기 위하여 cold cap 운전이 가능하도록 설계되어 있고 Tapping 시스템은 금속류의 용융물과 유리류의 용융물을 비중차에 의해서 분리 인출할 수 있도록 용융로 측면 하단에 설치되어 있다.

폐기물의 유리화 처리 과정에서 필연적으로 발생하는 배기체의 처리를 완전하게 하기 위해서는 우수한 성능의 Offgas 시스템이 반드시 필요하다. 본 설비는 용융부의 상부에 열적산화기를 설치하여 불완전하게 연소된 탄소류나 유기체 등을 완전 연소시키고, 이후 배출되는 고온의 배기체를 급냉각시켜 다이옥신과 같은 유해물질의 발생을 사전에 최대한 억제하고 그 밖의 NOx 나 SOx 등은 Atomizer, Scrubber, Cyclone Separator, Mist Eliminator, HEPA Filter 등에 의해 거의 완벽하게 처리하도록 설계되어 있다. 또한, 본 설비는 배기체의 처리과정 중에 발생하는 2차 폐기물인 폐세정용액 등을 시설 내부에서 직접 증발, 농축시킬 수 있는 시설을 갖추고 있기 때문에 폐기물 처리에 따른 부산물을 최소화 할 수 있다.

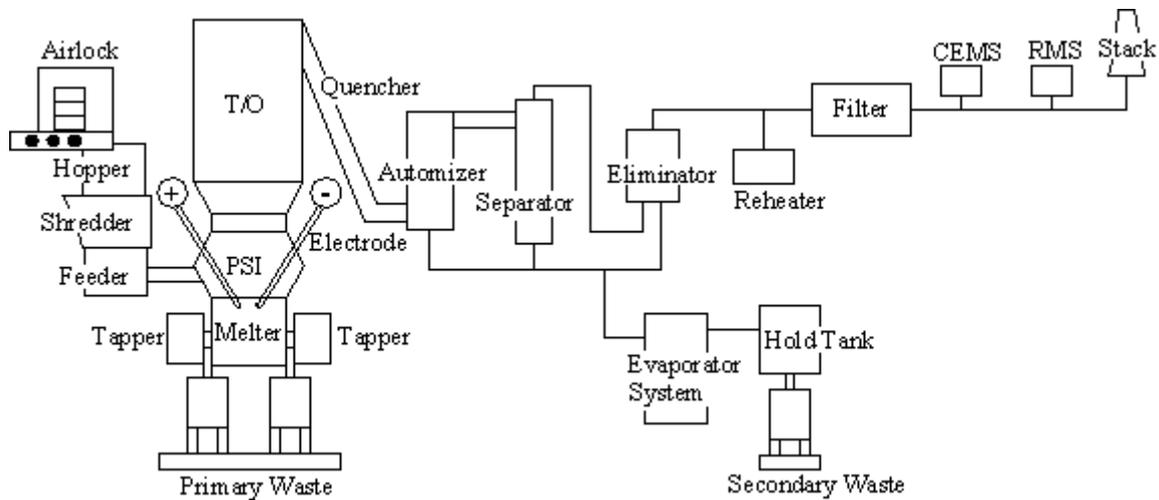


그림 1. 시스템 개략도

3. 실험 및 절차

모의 폐기물을 이용한 총 6회의 다양한 실험이 표 1 과 같이 수행되었다. 이들 중 4회는 방사성 물질이 없이, 2회는 방사성 물질을 주입하여 수행되었고, Phase 1의 4가지 실험의 수행시간은 12시간에서부터 17시간 30분 까지이며 Phase 2의 2가지 실험의 경우는 5시간 및 6시간이 소요되었다. 이들 각각 실험의 목표는, 산출물인 유리화체에 대한 밀도, 압축강도, 미세경도, 침출특성 등 유리화체의 특성분석과 더불어 본 실험설비 자체의 성능분석도 아울러 수행되었다.

3.1. 모의 폐기물의 제조

본 실험에서 사용된 모의 폐기물은 표 2와 같이 현재 국내에서 가동중인 원자력 발전소 고리 1, 2호기의 기존폐기물을 바탕으로 제조하였다. 실험 대상이 되는 초기 폐기물의 성분을 실제 발전소에서 발생하는 것과 가능한 유사하게 제조하는 것은 매우 중요한 사항이다.

본 실험에서는 이러한 사항을 중요시하여 부가적 첨가물을 최소화 했으며, 설비의 운영 성능 평가를 위한 몇몇 Spiking 물질을 표 1과 같이 첨부하였다.

표 1. 각 실험 단계별 실험 조건

실험단계		폐기물		주입 물질		실험시간 (시간)
		구성	사용량 (kg)	종류	주입량	
Phase 1	P 1-1	가연성	192	CoO CsCl PbO	2420g 1735g 500g	17.5
	P 1-2	레진	320	CoO CsCl PbO HgCl ₂ CdO	968g 694g 200g 200g 200g	16
	P 1-3	비가연성	240	CoO CsCl PbO HgCl ₂ CdO	968g 694g 1000g 1000g 200g	15
	P 1-4	혼합	736	N/A		12
Phase 2	P 2-1	가연성	212	Co-60 Cs-137	13.04mCi 9.71mCi	5
	P 2-2	비가연성	240	Co-60 Cs-137	13.13mCi 9.56mCi	6

표 2. 각 실험 단계별 모의 폐기물 조성

실험단계	폐기물 조성 (1드럼 기준으로 철제 드럼무게는 제외, kg (wt%))					
Phase1-1	가연성	PE	PVC	종이/천	-	계
		13.0 (40.6)	5.0 (15.6)	14.1 (43.8)	-	32.1 (100)
Phase1-2	수지고화체	시멘트	물	수지	-	계
		207 (65.6)	47 (15.0)	61 (19.4)	-	315 (100)
Phase1-3	비가연성	철/콘크리트	공기필터	유리	모래/기타	계
		20 (10.3)	40 (20.5)	65 (33.3)	70 (35.9)	195 (100)
Phase1-4	혼합	Boric acid	시멘트	Lime	물	계
		19 (5.4)	209 (58.9)	22 (6.2)	105 (29.5)	355 (100)

3.2. 수행된 실험들

3.2.1. 실험-1(Phase 1-1)

실험-1(Phase1-1)은 HTM(High Temperature Metals) 운행 조건 하에서 수행되었다.

HTM 조건이란, 유해한 금속의 방출에 대한 최악의 조건을 가정한 상태로서, 이 실험을 통하여 본 설비로서 방사성 폐기물을 유리고화할 경우 유리고화체의 특성과 방출될 수 있는 유해한 금속의 양이 허용치 이하에 있는지를 실증하는 것이다. 이를 위하여 별도 첨가된 물질이 표 1에 제시되어 있으며, 본 설비의 실험 실시 중에 방사성 물질의 이동 과정을 사전추적하기 위하여 비방사성 Co와 Cs가 모의 폐기물에 추가로 주입되었다. 본 실험은 가연성 모의 폐기물을 이용하였다.

3.2.2. 실험-2(Phase 1-2)

실험-2(Phase1-2)은 LTO(Low Temperature Organics) 운행 조건 하에서 수행되었다.

LTO 조건이란, 유독성 유기물질의 파괴와 제거에 대한 최악 조건을 가정한 상태로서, 이 조건의 실험을 위하여 시멘트화된 Resin 이 유리고화의 대상으로 선택되었고 이 조건에서의 유리고화체의 특성평가와 더불어 본 설비의 성능 평가를 위해서 별도 첨가된 물질은 표 1 과 같다. 또한 실험 실시 중 방사성 물질의 이동 과정의 사전추적을 위한 비방사성 Co 및 Cs 추가는 실험-1의 경우와 동일하다.

3.2.3. 실험-3(Phase 1-3)

실험-3(Phase1-3)은 LTNC(Low Temperature Non-Combustible) 운행 조건 하에서 수행되었다

LTNC 조건이란, 저온에서 모의 비가연성 폐기물(토양, 재, 콘크리트, 무기물 등)의 유리고화 시 유리고화체의 특성 평가와 더불어 유기물질의 완전한 파괴 및 금속류의 방출이 기준치 이하 인지 여부를 검토 하는 것이다. 이 조건에서의 본 설비의 성능 평가를 위해서 별도 첨가된 물질은 표 1 과 같고 실험 실시 중 방사성 물질의 이동 과정의 사전추적을 위한 비방사성 Co 및 Cs 추가는 실험-1의 경우와 같다.

3.2.4. 실험-4(Phase 1-4)

실험-4(Phase1-4)는 가연성, 비가연성 및 여타 물질로 구성된 혼합 모의 폐기물의 유리고화에 대한 실험이다.

3.2.5. 실험-5(Phase 2-1)

실험-5(Phase2-1)의 조건은 고온 상태에서 가연성 모의 폐기물을 사용하였고 방사성 물질인 Co 와 Cs 를 모의 폐기물에 주입하여 실험을 수행하였다. 이 실험을 통하여 설비 내부에서의 방사성 물질의 흐름을 분석할 수 있도록 했다.

3.2.6. 실험-6(Phase 2-2)

실험-6(Phase2-1)은 저온 상태에서 비가연성 모의 폐기물에 방사성 물질인 Co 와 Cs 를 주입하여 실험을 수행하였다.

4. 실험결과 분석 및 평가

Phase 1 의 4 가지 실험에 대한 산출물인 유리고화체가 그림 2 에 제시되어 있다. 이들 산출물에 대한 기본적인 특성 분석으로 압축강도, 밀도, 미세경도, 침출분율 및 침출속도의 측정이 수행되었고 본 설비의 성능 평가를 위하여 실시한 배기체에 대한 분석 및 투입된 폐기물에 대한 결과물의 감용률을 계산하였다.



(a) 가연성



(b) 비 가연성



(c) 고형화된 Resin



(d) 혼합체

그림 2. 유리고화 산출물

4.1. 고화체 물리적 특성 분석

유리고화체의 압축강도는 ASTM C39 시험 방법에 따라 측정하였으며, 1.3mm/min 의 Loading rate 를 택했고, 시편은 직경 2.2cm , 높이 3.8 – 4.6 cm 를 사용하였다. 또한, 밀도는 비중병을 이용하여 측정하였고 집중된 외부의 기계적 하중에 대한 대상물질의 강도를 나타내는 미세경도는 Vickers Microhardness 측정계(CLARK Co., Model MHT 1 Knoop Indentor)로서 측정하였다. 그 결과는 표 3 과 같이 측정되었다.

표 3. 유리고화체의 물리적특성

특성	측정값
압축강도	30 ~ 175 Mpa
밀도	2.42 ~ 2.95 g/cm ³
미세경도	5.5 ~ 5.8 Gpa

4.2. 고화체 침출특성

침출특성을 분석하기 위한 침출 분석은 PCT(Product Consistency Test)법에 의거 7 일간 수행하였다. 침출제로서는 2 차 증류수를 사용하였고 녹아 나오는 성분들의 농도는 ICP-MS (Varian, Model Ultramass 700)와 AA (Perkin Elmer, Model 5100PC)를 사용하여 분석하였다. 식 1 과 식 2 의 방식으로 계산된 유해 중금속에 대한 침출분율과 침출속도의 분석결과는 표 4 와 같이 나타났다.

표 4. 유리고화체의 침출특성 분석 결과

원소	침출특성	
	침출분율	침출속도 (g/m ²)
Co	$1.27 \times 10^{-4} \sim 1.08 \times 10^{-3}$	$4.14 \times 10^{-7} \sim 5.53 \times 10^{-6}$
Cs	$2.46 \times 10^{-3} \sim 3.23 \times 10^{-2}$	$4.58 \times 10^{-5} \sim 3.87 \times 10^{-4}$
Pb	$1.85 \times 10^{-3} \sim 5.45 \times 10^{-3}$	$5.14 \times 10^{-6} \sim 2.12 \times 10^{-5}$
Cd	$8.68 \times 10^{-4} \sim 7.76 \times 10^{-3}$	$5.51 \times 10^{-8} \sim 1.46 \times 10^{-7}$
Hg	-	-

$$\text{침출분율, FLi (Fraction Leached)} = \text{Ct,i} / \text{Co,i} \quad (1)$$

여기서, FL : i 성분의 침출분율, Ct,i : 시간 t 에서 침출액중 i 성분의 질량, g
Co,i : 미 침출 시료중의 i 성분의 질량, g

$$\text{침출속도, LR(Leach Rate)} = \text{Ct,i} / (\text{SA} \times t), \text{ g/m}^2 \text{ day} \quad (2)$$

여기서, LR : 침출속도, g/m² day, SA : 시료의 표면적, m²
t : 침출액의 회수시간, day

4.3 배기체 분석

실험 중 발생하여 배출되는 배기체의 분석결과 그림 3 에서 그림 6 까지와 같이 CO 는 약 20ppm, NO₂는 약 15ppm, SO₂는 약 1.5ppm 이 측정되었으며 다이옥신 및 퓨란은 평균 0.016ng 이 측정되었다. 이 결과는 표 5 과 같이 각각의 환경규제치를 만족하며 본 설비의 배기체로 인하여 환경에 미치는 영향이 거의 없을 것으로 판명된다. 또한, Phase 2 에서 폐기물에 주입된 Co-60 과 Cs-137 의 방사성 물질은 운전조건에 따라 약간의 차이는 있으나 대부분이 유리고화체에 포집되거나 배기체 처리계통에 포집되어 실제로 스택을 통하여 대기로 방출되는 핵종은 검출되지 않아 방사성 물질에 대해서도 안정성을 입증하였다.

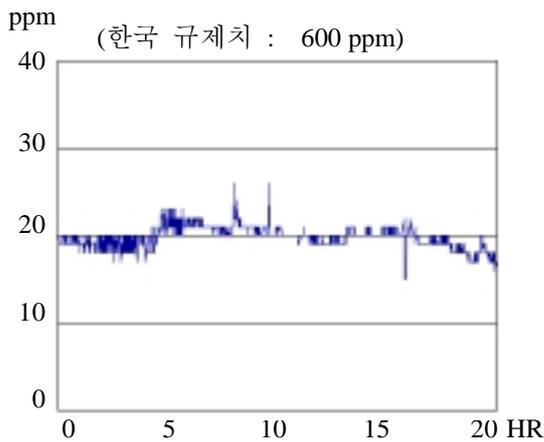


그림 3. CO 그래프

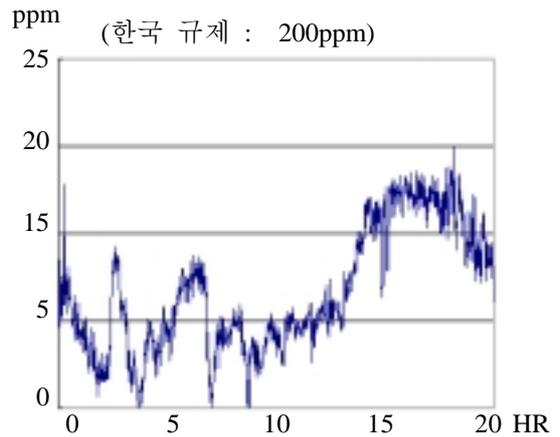


그림 4. NO₂ 그래프

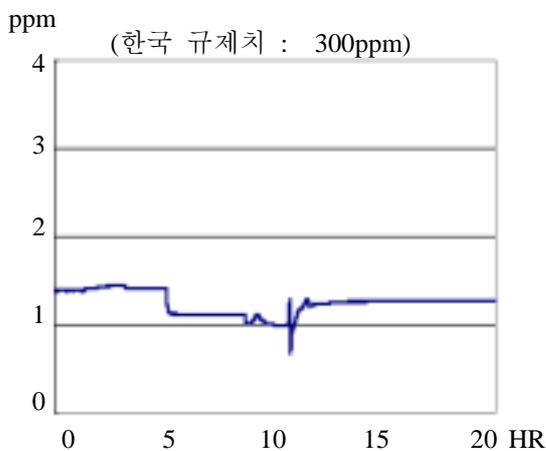


그림 5. SO₂ 그래프

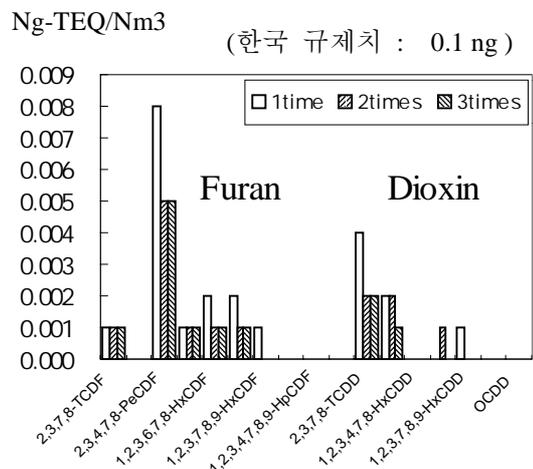


그림 6. Dioxin & Furan 그래프

표 5. 배기체의 검출량과 환경 기준치

배기체 명	배출량	환경기준	비고
다이옥신	0.016 ng	0.1ng – TEQ/dscm	KEPA/KINS
CO	20 ppm	600ppmdv	KEPA/KINS
SO ₂	1.5ppm	300ppm	KEPA/KINS
NO ₂	15ppm	200ppm	KEPA/KINS

4.4 부피 감용률

본 설비의 경제적 타당성을 평가하는 척도인 감용률(Volume Reduction Factor; VRF)은 식 3 과 같이 정의되며 각 단계의 실험에 사용된 폐기물과 첨가제의 부피, 실험 후 유리고화체의 생성 부피량과 이 결과를 통한 감용률은 표 6 과 같이 얻었다.

$$VRF = \text{input waste volume} / \text{output waste volume} \quad (3)$$

표 6. 부피 감용율

실험단계	폐기물의 종류	폐기물투입량 (부피 : L)	첨가제 투입량 (부피 : L)	유리고화체 생산량 (부피 : L)	부피 감용비 (VRF)
Phase 1-1	가연성	-	-	-	40~100*
Phase 1-2	레진	200	125	116	2.8
Phase 1-2	비가연성	240	149	149	3.0
Phase 1-2	혼합	1511	-	144	10.5

* 추정값임

여기서, 가연성 폐기물에 대한 감용률은 투입량에 비해 고화체 생산량이 매우 적어 실제 측정에 의한 산정이 어려우며 이론적으로 철 드럼과 첨가제를 제외하고는 소각과 같은 감용율을 보일 것으로 예상된다.

5. 결론

기 수행된 실험을 통하여, 원자력 발전소에서 발생하는 중·저 준위 방사성 폐기물의 유리고화 처리의 가능성을 확인할 수 있었다. 특히 실험-4를 통하여 얻은 결과는 원자력 발전소에 보관 중인 기존 혼합 폐기물을 별도 분리할 필요없이 유리고화의 가능성을 확인할 수 있었다. 다만, 실제 중·저 준위 폐기물은 복잡한 조성을 가지고 있어 유리고화체의 특성 향상과 안정적인 생성을 위한 조건들의 확립이 필요하므로 보다 많은 지속적인 실험이 필요하다.

본 유리고화 설비는 방사성 폐기물 처리 이외에 도시 폐기물 처리, 각종 지정 유해 폐기물 처리, Sludge, Ash 및 병원 폐기물과 같은 다양한 분야에 응용할 수 있다. 또한 폐기물의 부피를 획기적으로 감소시킬 수 있을 뿐만 아니라, 일반 폐기물 소각 과정에서 발생하는 다이옥신 등과 같은 배기체를 실험결과와 같이 거의 제거, 소멸시킬 수 있어 자연과 환경에 기여하는 환경설비로 부각될 수 있을 것으로 판단된다.

참고문헌

1. “Advanced Mixed Waste Treatment Project Melter System Preliminary Design Technical Review Meeting”, Idaho National Engineering Laboratory & Lockheed Martin Idaho Technologies, Idaho Falls, 1995
2. “Demonstration Testing for Mixed Waste Thermal Treatment Technologies”, Energy and Environmental Research Corporation, Irvine, 1997
3. Karita, Y., et al., “ The Induction Heat Melting/Solidification System for Low-Level Radioactive Incinerator Ash”, in “Treatment and Conditioning of Radioactive Incinerator Ashes”, pp.161-170, Ed. By L. Cecille and C. Kertesz, Elsevier Applied Science, N.Y., 1991
4. F. Komatsu, A. Takusagawa, R. Wada, and K. Ashina, “Application of Microwave Treatment Technology for Radioactive Waste”, Waste Manag., Vol.10, pp.211-215, 1990
5. Ganser, B., “Conditioning of Ashes from Combustion Plants in Special Melting Furnaces”, in “Treatment and Conditioning of Radioactive Incinerator Ashes”, pp.190-200, Ed. By L. Cecille and C. Kertesz, Elsevier Applied Science, N.Y., 1991
6. Kachalova, E.A., et al., “Incorporation of Concentrated Intermediate Level Liquidradioactive Waste into Glass-like and ceramic Matrixes”, Proceeding of International Symposium on Radiation Safety Management '99, PP.194-200, Taejon, 1999
7. “대기환경보전법, 시행령, 시행규칙”, 환경부, 1998
8. 방사선량 등을 정하는 기준, 과학기술부 고시 제 98-12 호, 1998