

파일럿 규모 저온 용융로를 이용한 잡고체의 유리화
Vitrification of Dry Active Waste Using Pilot Scale Cold Crucible Melter

김천우, 박병철, 맹성준, 최관식, 박종길, 신상운, 송명재
한전 원자력환경기술원
대전광역시 유성우체국 사서함 149호

요 약

중·저준위 방사성폐기물중 발생량이 많고 다양한 종류로 구성되어 있는 가연성 잡고체의 유리화를 위하여 비 방사성 모의 잡고체를 투입하여 파일럿 규모의 저온 용융로에서 유리화 하였다. 저온 용융로내에서 혼합 잡고체 투입시 운전특성, 연소와 먼지 발생특성 그리고 유리 고화체의 품질들이 조사, 평가되었다. 유리 용융물의 온도는 1,150°C 근처에서 일정하게 유지되었고 여기에 혼합 잡고체가 시간당 10, 15, 20 kg으로 투입되었다. 초기 Base 유리화 최종 유리의 점도는 적정 운전조건 범위에서 크게 변하지 않았으며 전기 전도도는 0.33 S/cm로 일정하게 유지되었다. 잡고체 폐기물의 연소는 안정적으로 이루어졌으며 사용된 잡고체로부터 발생된 분진량도 3.03%로 낮은 상태였다. 연돌에서의 모든 유해가스들의 농도는 환경기준치 이하의 농도로 방출되었다. 투입된 잡고체에 의한 유리성분의 변화는 크지 않았으며 물리적 특성 및 화학적 견고성을 만족하는 유리 고화체였다.

Abstract

A simulated mixed dry active waste(DAW) has been vitrified using a pilot scale cold crucible melter(CCM). A processability, characteristics of the combustion and dust generation of the DAW in the CCM, and glass properties were investigated and evaluated. The glass melt was maintained at around 1,150°C constantly and the mixed DAW was fed into the CCM at the feed rate of 10, 15, and 20kg/h during the test. The viscosities of the base and the final glass were well within the desired range. There was no electrical conductivity difference between the base glass and the final glass and it was also within the desired range, as 0.33 S/cm. A stable combustion process of the DAW was performed during the test. And only 3.03% of the dust was generated from the cold crucible melter. All regulated emission gases in the stack were well below the environmental regulation limits. The physical properties and chemical durability of the waste glass were satisfactory the required quality.

1. 서론

원자력발전소에서 발생하는 중·저준위 방사성폐기물중 가연성 잡고체 폐기물을 물리, 화학적 내구성이 강하고 또한 부피 감용 효과를 높일 수 있는 유리화(Vitrification)가 가능한지를 확인하기 위하여 발생 폐기물과 유사한 비 방사성 혼합폐기물을 이용하여 유리화 실험이 실시되었다. 이 실험을 위하여 파일럿 규모의 유도전류 가열식 저온 용융로(Cold Crucible Melter, CCM)와 발생하는 배기체를 처리하기 위하여 배기체 처리 시스템(Off-Gas Treatment System, OGTS)이 사용되었다.

원자력발전소에서 발생하는 가연성 잡고체 발생량은 발전소의 운전상태에 따라 다소 차이가 나기는 하지만 전체 폐기물 발생량의 40~50%를 차지하고 있으며, 원자력발전소의 운영 및 유지, 보수중에 발생하는 방호복, 비닐시트, 제염지, 목재 등으로 구성되어 그 종류와 성분이 다양하므로 유리화 할 경우 유리고화체 및 배기체 처리 공정에 민감한 영향을 미칠 수 있다. 전체 가연성 잡고체의 성분별 발생량을 살펴보면, 셀룰로오스가 가장 많으며 그 다음으로 플라스틱이나 고무류가 차지하고 있다. 먼류와 종이류는 셀룰로오스 성분이 대부분이다. 표 1은 가연성 잡고체의 종류별 연평균 발생량을 보여주고 있으며 표 2는 폐기물별로 열분해 시켰을 때 발생하는 평균 재(Ash)의 양과 이들 재의 주요성분에 대한 내용이다.¹

표 1. 가연성 잡고체의 종류별 발생량

구분	발생량	종류	연평균 발생량	
			드럼수 기준 (vol%)	질량 기준 (wt%)
먼 류		작업복, 양말, 장갑, 실내화 등	15.5	23.0 (10.1 ton)
종이류		제염지, 종이작업복	19.2	33.2 (14.6 ton)
비닐류		비닐봉지, 비닐시트, 슈즈커버 등	47.9	29.5 (13.0 ton)
고무/플라스틱류		고무장갑, 고무신, 시약병 등	7.3	8.9 (3.9 ton)
Lancing 필터		Bag filter, Catridge filter	1.8	0.6 (0.3 ton)
목재류		일반목재, 합판	3.3	2.1 (0.9 ton)
기 타		혼합물	5.1	2.7 (1.2 ton)
합 계		-	100.0	100.0 (44.0 ton)

표 2에서 보여 주듯이 비닐류를 제외한 나머지 폐기물에서 발생하는 무기원소들은 대부분 유리고화체를 형성 하는데 문제 발생 가능성이 적으나, 비닐류에 포함되어 있는 크롬(Cr_2O_3)과 납(PbO) 산화물의 경우는 유리 고화체에 최소로 투입되어야 할 원소들이다. 일반적으로 크롬산화물이 전체 유리원소의 1 wt% 이상을 초과 할 경우 유리의 점도를 급격하게 상승시켜 혼합과 배출 용이성을 감소시키고 유리의 견고성 실험인 TCLP(Toxicity Characteristic Leaching Procedure)에서도 실패할 수 있다.² 납(Pb)의 경우 유리내에서 용해도가 실리카(Si), 인(P)와 함께 매우 높으나 침출이 잘되고 다른 원소

들의 화학적 견고성을 감소하게 만든다. 따라서, 비닐류는 유리화 과정에서 최소로 투입되어야하며, 가능 하다면 발생시기부터 별도로 분류하여 보관하는 것이 바람직 하다.

표 2. 잡고체 폐기물별 재(Ash) 생성량 및 주요성분

구분	Ash	평균 Ash량 (wt%)	재(Ash)의 주요성분
면 류		0.68	K ₂ O, CaO, TiO ₂ , SiO ₂ , Na ₂ O, MgO, Al ₂ O ₃ , ZnO
종이류		0.46	SiO ₂ , CaO, Na ₂ O, MgO, Al ₂ O ₃ , K ₂ O
비닐류		4.32	CaO, TiO ₂ , SiO ₂ , Cr ₂ O ₃ , PbO
고무/플라스틱류		2.26	ZnO, CaO, MgO, SiO ₂ , K ₂ O
Lancing Filter		0.1	Al ₂ O ₃ , MgO, Fe ₂ O ₃ , CaO
목재류		0.31	CaO, Fe ₂ O ₃ , SiO ₂ , K ₂ O, Al ₂ O ₃ , MgO, Na ₂ O
평균조성 잡고체		1.81	-

2. 실험

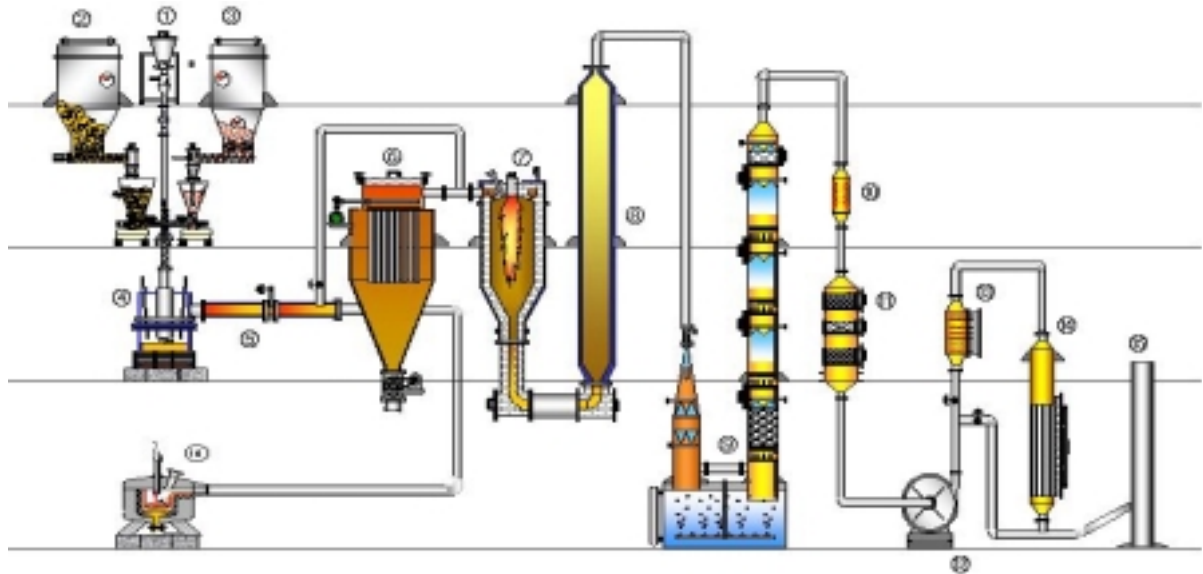
저온 용융로(CCM)내에서 평균조성으로 구성된 혼합 잡고체 투입시 운전 용이성과 연소 및 배기체 특성 그리고 고화체 특성변화를 관찰하고 평가하고자 1,150°C 근처의 온도에서 유리화가 실시되었다. 이 실험에 사용된 유리화 설비의 개략적인 설명과 주요 운전 조건 및 배기가스를 비롯한 고화체의 성분분석 방법들에 대하여 기술하였다.

2.1 파일럿 규모 유리화 설비

가연성 잡고체를 유리화 하기 위하여 한전 원자력환경기술원의 대덕연구단지내 연구동에 설치된 유리화 설비를 이용하였는데 설비의 개략도는 그림 1과 같다. 이 설비는 가연성 폐기물을 유리화 하기 위해 유도 가열 방식 저온 용융로④를 이용하고 비가연성 폐기물의 처리를 위해서는 플라즈마 토치 용융로⑩를 이용하는 복합 시스템으로 구성 되어 있으며 두 용융로에서 발생하는 유해 배기체는 하나의 배기체 처리 시스템으로 처리할 수 있도록 되어 있다. 가연성 폐기물의 주입기(Feeder)②를 통하여 저온 용융로④에 투입된 폐기물은 연소 및 열분해 과정을 거쳐 마지막으로 유리구조내에 유해무기물질들이 포획된다. 저온 용융로를 떠난 고온 배기체들은 배관 냉각기(Pipe Cooler)⑤를 거쳐 500°C 정도로 급속히 냉각되고 고온필터(High Temperature Filter, HTF)⑥에 유입되고 세라믹 필터에 대부분의 입자들이 포획되도록 되어 있다.

저온 용융로는 원통형 외벽이 수냉각 방식으로 냉각 상태에 있으며 약 272 kHz의 고주파 전류가 용융로 외부를 감싸고 있는 인덕터(Inductor)에 걸리게 되어 있고 여기에서 발생하는 전자기파에 의해 용융로내부에 유도전류(Induced current)가 형성되게 되어 있다. 기존의 유리 용융방식은 유도전류에 의해 용융로를 발열시켜서 내부의 유리를 용융시켰던 간접 용융방식을 많이 사용하였으나 한전 원자력환경기술원의 설비는 직접 용융방

식을 채택하였다. 이 방식의 장점은 유도전류가 용융하고자 하는 유리에 직접 전달되므로 용융 유리를 감싸고 있는 저온 용융로의 수명을 연장시킬 수 있다. 반면, 단점으로는 용융로가 수냉각되고 있으므로 인해 용융 유리내부에서 외부로의 에너지 손실이 많음을 알 수 있다.³



- | | | | |
|-------------------|-----------------------|--------------|-------------|
| ① Glass frit 공급장치 | ② DAW 공급장치 | ③ Resin 공급장치 | ④ 유도가열식 저온로 |
| ⑤ Pipe Cooler | ⑥ 고온필터 | ⑦ 후단연소기 | ⑧ 배기체 냉각기 |
| ⑨ 급냉/세정기 | ⑩ 재열기 | ⑪ 활성탄 필터 | ⑫ 배기팬 |
| ⑬ 재열기 | ⑭ NO _x 제거기 | ⑮ 기체 배출구 | ⑯ 플라즈마 용융로 |

그림 1. 파일럿 규모 유리화 설비 개략도

입자들 외에 고온 필터를 빠져나간 일산화탄소(CO)와 다이옥신(Dioxin)을 비롯한 독성가스들의 일부분은 후단연소기(Post Combustion Chamber, PCC)⑦내의 1,100°C 고온상태에서 파괴되고 SO_x, HCl 등 산성가스들은 세정기⑨에서 중화제(NaOH)를 이용하여 NaCl과 Na₂SO₄와 같은 염으로 변환시키도록 되어있다. 재열기(Reheater)⑩와 HEPA 필터⑪를 지난 질소산화물(NO_x)은 질소산화물 환원계통(SCR)⑭에서 N₂ 가스로 환원되는데 이 계통은 암모니아 주입관, 암모니아와 배기가스를 혼합할 수 있는 Line mixer, 그리고 촉매로 구성되어 있다. 질소산화물 환원 촉매로는 TiO₂, V₂O₅, WO₃의 세 가지 성분이 벌집형의 세라믹 모재에 함침되어 있는 것을 이용하였다.

2.2 주요 운전조건

비 방사성 혼합 잡고체를 파일럿 규모의 저온 용융로(CCM)에서 2000년 4월 28일부터 29일 사이 평균 조성의 혼합 잡고체(셀룰로오스 50%, 폴리에틸렌 20%, PVC 20%, Rubber 10%)에 대하여 유리화 하였다. 실험은 네 개의 조건으로 나누어 실시되었는데 첫 번째부터 세 번째 까지는 동일한 과잉산소량 100%에 잡고체의 공급속도를 시간당 10,

15, 20 kg으로 공급하였고 네 번째 조건은 70%의 과잉산소에 잡고체 공급속도는 세 번째와 동일한 시간당 20 kg으로 공급하였다. 각 조건별 운전기간과 잡고체 투입량은 표 3에 자세히 나타나 있다.

표 3. 평균 혼합잡고체의 유리화 운전조건

시험 조건	잡고체 공급 속도, kg/h	산소공급량, Nm ³ /h	운전기간	과잉산소	잡고체 투입량, kg
#1	10	중앙: 19 주변: 6×1.35	2시간	100%	18
#2	15	중앙: 28.7 주변: 6×2.0	2시간 3분	100%	32.5
#3	20	중앙: 38 주변: 6×2.7	2시간 47분	100%	52.5
#4	20	중앙: 32.3 주변: 6×2.3	52분	70%	17.1

초기 용융준비단계로 60 kg의 유리 원료(Glass frit)를 저온 용융로내에 충전하고 유리 원료 사이에 티타늄 금속고리를 수평으로 장착한 다음 고주파 발진기로 부터 저온 용융로 내부에 전력을 단계적으로 증가 시켜 초기 점화를 유도하였다. 티타늄 금속고리가 발화되어 유리가 용융단계에 이르면 버블러를 통하여 공기를 주입하고 저온 용융로내 유리의 용융이 균질하게 일어나도록 하였다. 유리가 완전 용융된 후 약 10.4 kg의 B₂O₃를 투입하여 유리의 점도가 1,150°C 근처에서 100 poise 이하가 되도록 하였고 유리의 온도가 일정하게 유지되도록 하였다. 총 120.1 kg의 혼합 잡고체가 시간당 10, 15, 그리고 20kg으로 주입기를 통하여 투입되었으며 이때부터 바닥 버블러를 통하여 산소가 공급되고 또한, 용융로 상부챔버로부터 산소가 주입되어 잡고체의 완전연소를 유도 하였다.

2.3 배기체 가스 농도분석

유리화 시설에서 배기체 농도분석은 On-line 분석기와 Portable 분석기에 의해 측정하였다. 두 분석기중에서 On-line분석기는 연돌에 고정하여 유리화 시설에서 처리된 배기체에 대해 배출 직전의 가스 중의 O₂, CO, CO₂, HCl, NH₃, NO_x를 비교적 저농도 범위에서 연속적으로 분석하였다. 반면, Portable 분석기는 OGTS(Off-Gas Treatment System) 단위(Unit)들의 배기체 처리성능을 평가하기 위해 공정중의 여러지점에서의 배기체 농도분석에 사용하며 O₂, CO, SO_x, NO, NO₂, C_xH_y 등을 비교적 높은 농도 범위에서 분석하였다. 그러나, 25% 이상의 O₂, 4,000ppm 이상의 CO, 2,000ppm 이상의 NO, 2,000ppm 이상의 SO₂ 그리고 5%이상의 C_xH_y는 Portable 분석기 분석범위를 초과하기 때문에 별도의 Batch 흡수법 또는 희석분석(Batch 혹은 연속) 방법으로 분석 하였다. 한편, 배기체중의 분진농도는 대기오염공정시험법에 따른 등속흡입장치(Isokinetic Dust Sampler)에 의해 별도로 측정하였다.

2.4 성분분석

유리고화체, 분진 및 액상에 존재하는 주요성분들의 정량분석을 위해 사용하는

ICP(Inductively Coupled Plasma)분석방법은 라디오파 코일 속으로 아르곤(Ar) 가스를 통과시켜 발생시킨 아르곤 플라즈마(Plasma)를 사용하여 시료 원소들을 여기시켰다. ICP를 위한 시료의 조제 방법은 산분해법 또는 알카리용융법을 사용하여 용융상태로 만든 다음 Volumetric Flask에 이 용액을 부은 후 아르곤 플라즈마에 주입하여 각 원소들이 여기될 때 나오는 고유 파장을 측정하여 정량분석한다. 이 방법으로 분석할 수 있는 원소의 수는 주기율표상의 70wt% 이상이나 유리내의 규소의 분석이나 ppb단위의 극미량 분석에는 다른 분석방법을 이용해야 한다. 본 연구의 시료에서 규소의 분석방법으로는 알칼리 용융 습식중량법을 사용하였다.

3. 결과 및 토의

저온 용융로와 배기체 시스템으로 구성된 파일럿 규모 유리화 설비에서 혼합 잡고체 투입시 운전 용이성과 연소 및 배기체 발생특성 그리고 고화체의 특성에 대한 결과 및 토의를 간단히 기술하였다.

3.1 연소 및 배기체 특성

저온 용융로에서 발생하는 가스의 온도는 폐기물 투입속도가 20 kg/h, 100% 과잉산소를 공급할 때 325~370°C로 가장 높게 나타났다. 고온필터에서의 차압은 폐기물 투입 시작 후부터 계속 증가하여 20 kg/h로 투입할 때에는 30mmH₂O였으나 폐기물 투입이 1시간 36분 동안 중단된 동안 계속 declogging이 이루어져 8 mmH₂O로 낮아졌다. 세정기 전 후단의 압력차는 약 15 mmH₂O였으며 약 150°C로 유입되는 가스의 온도가 약 25°C로 냉각되었다. 연돌(Stack)에서 CO₂ 농도는 폐기물 투입이 시작되는 순간에 31%까지 증가하였으며 CO는 후단연소기 기동시와 정지시 최대 550 ppm을 나타냈다. 이 실험에서는 과잉산소 100%에서 평균 잡고체의 투입량을 단계적으로 증가(10 → 20kg/h)시켰다. 고온필터 후단에서 휴대용 가스분석기(PGA)를 사용하여 반연속적으로 배기체내 가스 농도를 분석하였다. 표 4 에 실험 결과를 종합하여 정리하였다. 실험결과 각 조건에서 CO농도는 1,500ppm 이하로, C_xH_y 농도는 0.06% 이하로 비교적 저온 용융로의 연소가 안정적으로 이루어지고 있음을 알 수 있었다.

본 실험에서 투입한 혼합 잡고체는 20%의 PVC를 포함하고 있으므로 Cl 함량이 7% 정도로 높아 배기체 중 HCl 가스가 발생되었을 것으로 예상되었으며, 특히 배기체 시료 채취시 산성가스의 응축으로 인한 장치의 손상이 우려되었다. 시험 조건별로 먼지시료를 등속 흡인으로 채취한 결과 probe내 배기가스의 응축현상이 두드러졌으며 골무형 여지교환을 위해 상온으로 냉각시켰을 때 여과지 홀더에 초록색의 응축액이 고여 있었다. 이는 Cl₂가 냉각되면서 배기체 중 수분과 함께 probe 표면에 응축된 것으로 보인다.

사용된 잡고체 120.1 kg중 분진 발생량을 확인하기 위하여 저온 용융로내 유리와 후단연소기 전단의 모든 분진 재고량을 측정한 결과 사용된 잡고체로부터 분진 발생비를 계산할 수 있었고 투입된 잡고체 120.1 kg의 3.03%가 분진형태로 발생된 것으로 확인되었다. 고온 필터에 붙잡힌 재의 원소분석 결과 불완전연소의 대표적 물질인 미연탄소(C)는 연소시간이 경과될수록 그 함량이 낮아졌으나 Na 성분은 계속 증가되었다. 특히 분진에 납(Pb)이 소량 존재하므로 환경방출이 없도록 포집된 분진의 재순환이 필요하다. 또한 분진에 Ca 성분은 고온필터의 온도를 600°C로 유지하고 필터표면에 형성된 분진 cake를 이

용하면 배기체내 SO_x를 저감(Ca₂SO₄)시킬 수 있는 역할을 한다. 그러나 본 실험은 SO₂ 농도가 100ppm 이하로 낮았고 필터내부 온도를 200℃로 유지했기 때문에 이를 평가하지 않았다.

표 4. 배기체 처리공정 운전변수

운전 변수	시험 조건	No feeding & PCC operation	혼합 잡고체 투입			
			10kg/h 100% O ₂	15 kg/h 100% O ₂	20 kg/h 100% O ₂	20 kg/h 70% O ₂
투입시간		-	2h	2h 3m	1h 55m	52m→(1h 36m 후)52m
저온 용융로						
• 유리온도(℃)	TIT-1001	1400~1200	~1210	1150~1230	~1140	1000~1120
배관 냉각기						
• 가스온도(℃)	inlet	~120	~230	280~330	325~370	~350
	outlet	~90	140	→175	~220	~220
• 유량(Nm ³ /h)		~30	43→33	43	50	48
• 압력(mmH ₂ O)		sp= -40	-40(±30)	-40(±30)	-40(±30)	-40(±30)
고온필터						
• 차압(mmH ₂ O)	내부	~15	23→14	~18	~23	30→22
• 산소농도(%)	outlet	21	30→35	~33	35~40	~33
• 가스온도(℃)	내부	200	200	→250	→280	→250
• 가스온도(℃)	outlet	180	175→160	→170	140→195	150→165
후단연소기						
• 가스온도(℃)	outlet	800~870	~900	~950	~990	~990
세정기						
• 압력(mmH ₂ O)	inlet	-	-70	-75	-95	-100
	outlet	-	-80	-85	-110	-112
• 가스온도(℃)	outlet	~26	~26	~26	~23	~21
SCR						
• NO _x (ppm)	inlet	max. 1500 (start: 600)	710~1200	800~1320	900~1450	900~1450
연돌(Stack)	NO _x (ppm)	max. 380	20~60	20~60	20~60	20~60
	CO ₂ (%)	max. 31	10~14	10~14	26~13	24→12
	CO (ppm)	max. 550 (start)	< 10	< 10	< 10	< 10
	O ₂ (ppm)	~16	~20	~22	~25	~22
	HCl (ppm)	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1
	SO _x (ppm)	~5	~5	~5	~5	~5

3.2 고화체 특성

혼합 잡고체 폐기물이 투입되기 전 Base 유리의 화학적 성분은 표 5에 나타나 있으며 점도는 1,150℃에서 56 poise로 계산되었다.⁴ 운전온도에서 유리 용탕의 점도가 100 poise 이하이면 잡고체 폐기물을 투입할 수 있는 최적의 점도라 할 수 있다. 또한, 저온 용융로의 바닥 배출구를 통하여 시료 채취를 위한 중간 배출이나 최종적으로 저온 용융로내의 모든 유리를 비울 때도 요구되는 점도가 100 poise 이하이면 만족된다.

잡고체 폐기물이 투입되고 나서 채취된 CCM 중앙 유리의 성분을 ICP-AES를 이용하

여 분석한 결과 Base 유리와 비교해서 CaO외에는 특별한 화학적 조성의 변화는 없었다. 유리 상부에서 발견된 미량의 상 분리층의 경우 알루미늄, 붕소, 규소는 중앙 유리와 비교해서 감소하고 나트륨과 탄소의 농도는 미량 증가하였다. 이는 휘발성이 있고 비중이 낮은 나트륨층이 유리 상부에서 유리와 분리되어 떠 있었기 때문으로 추정되며, 탄소 농도가 증가한 이유는 폐기물의 완전 연소와 열분해가 일어나지 않은 상태에서 CCM이 냉각되었기 때문인 것으로 판단된다. CCM 벽면과 유리의 표면이 만나는 경계에서 채취된 시료에서는 휘발성이 높은 붕소와 나트륨의 농도가 중앙 유리에 비해 약간 높았으나 중앙 유리와 특별한 차이는 발견되지 않았다.

표 5. 혼합 잡고체 실험 유리의 성분분석

Oxides (wt%)	Base 유리	최종유리
Al ₂ O ₃	14.08	15.80
B ₂ O ₃	20.33	18.61
BaO	0.00	0.20
CaO	0.08	3.44
Cr ₂ O ₃	0.00	0.10
Fe ₂ O ₃	0.02	0.27
K ₂ O	0.20	0.13
MgO	0.01	0.18
MnO ₂	0.00	0.01
Na ₂ O	22.26	23.55
P ₂ O ₅	0.00	0.02
PbO	0.00	0.09
SiO ₂	42.98	43.38
SrO	0.00	0.01
TiO ₂	0.03	0.73

유리의 물리, 화학적 품질과 운전 용이성(Processability) 그리고 구조적 품질 (Structural quality)을 살펴보고 평가하기 위해 표 6에 Base유리와 최종 유리의 품질을 나타냈다. 최종유리의 밀도는 2.55 g/cm³로 요구하는 값을 만족하였다. 유리의 화학적 견고성을 나타내는 Si의 7-day PCT 결과는 0.18로 요구하는 값 1 이하보다 훨씬 낮은 값으로 충족하였으며, 1,150°C 운전온도에서 용융 유리의 점도는 잡고체 폐기물이 투입되기 전에는 56 poise 이었으나 잡고체가 모두 투입되고 난 후에는 48 poise로 변화가 심하지 않았으며 최적의 상태를 유지하였다.⁵ 초기 Base 유리와 최종 유리의 전기 전도도는 둘 다 0.33 S/cm로 변화가 없었으며 이로 인해 용융 유리에 전달되는 전력이 안정적으로 공급 되었고 용융 유리의 온도 조절 또한 쉬웠다.

유리의 액상온도(Liquidus temperature)는 최종 유리에 대해서 764°C로 안정권에 있었다. 유리를 장기적으로 용융시킬 때 결정이 일어나지 않게 액상온도 이상으로 유지하는 것은 매우 중요하다. 처리온도에서 균질의 용융 유리가 생성되면 유리의 정상배출 및 장기운전이 가능하고, 반대로 결정질의 상이 형성되면 침강이 일어나고 그것은 궁극적으로 침적에 의한 유리배출구의 막힘 현상을 일으킬 수 있을 뿐 아니라 유리의 화학적 견고성 (Chemical durability; Leachability)에도 영향을 주게된다. 일반적으로 용융온도와 액상

온도는 조성에 따라 매우 달라진다. 용융온도와 액상 온도는 Pacific Northwest National (PNNL)에서 제시한 식에 의해 계산되어졌다.⁶

유리의 구조적 변수로서 음이온과 양이온의 비를 나타내는 R 값은 모두 2 이상으로 만족하였으며 유리 구조에서 공유결합(Covalent bonding)을 하고 있어 물리, 화학적으로 견고성을 나타낼 수 있는 Tetrahedra 구조의 수 역시 두 유리에서 각각 104와 98로 요구하는 50을 훨씬 초과하여 만족하였다. 알루미늄은 유리구조내에서 나트륨과 일정한 비율로 존재할 때 Tetrahedra 구조를 이루게 되어 유리의 화학적 견고성을 증가시키는데 표 6에서 보여주듯 두 산화물의 몰비가 1또는 그 이하가 되어야 한다. 최종 유리의 경우 0.41로써 이를 만족하고 있다. Basicity 역시 두 유리 모두 만족하였다. 그러나, 용융 유리 내의 Foaming 발생여부에 대해 나타내는 Fe^{2+}/Fe^{3+} 비율값은 두 유리 모두 0.07로 저온 용융로 내부를 육안으로 지속적 관찰은 어려웠지만 과잉산소로 인한 유리의 Foaming이 발생되었을 것으로 예상된다.⁷

표 6. 1,150°C에서 Base 및 최종유리의 주요한 품질

Quality Indicators	Base 유리	최종 유리	Desired Range
밀도(g/cm ³)	2.49	2.55	X >= 2.50
7-day PCT Leachate Si	0.24	0.18	X < 1.00
점도 (poise)	56	48	10 < X < 100
전기 전도도 (S/cm)	0.33	0.33	0.18 <= X <= 0.50
액상 온도 (°C)	766	764	X <= 1,050
R=Anion/Cation	3.11	3.05	X > 2.00
# of Tetrahedra	104	98	X > 50
[Al ₂ O ₃]/[Na ₂ O]	0.38	0.41	X <= 1.00
Basicity Ratio	0.32	0.39	X <= 1.00
Fe ²⁺ /Fe ³⁺	0.07	0.07	0.10 <= X <= 0.50

4. 결론

비 방사성 혼합 잡고체를 파일럿 규모의 저온 용융로와 배기체 처리 시스템으로 구성 되어 있는 유리화 설비에서 유리화 한 결과 안정적 운전과 연소, 낮은 먼지 발생특성을 확인하였고 물리적, 화학적 견고성이 뛰어난 유리 고화체를 만들 수 있었다. 1,150°C에서 유리의 점도와 전기 전도도는 모두 저온 용융로의 운전 조건 범위를 만족하였다. 연돌(Stack)로 방출되는 SO_x, NO_x, CO, HCl 등 환경으로 방출될 때 엄격하게 규제되어야 하는 유해가스들은 모두 환경 규제치를 만족하였으며, 유리 고화체는 물리, 화학적으로 견고성이 우수한 품질을 가지고 있었다. 그러나, 유리화 설비를 장기간 운전하여 설비의 안정성과 물리적 견고성 그리고 배기체들의 거동 특성과 유리 고화체의 물리, 화학적 특성을 자세히 평가하기 위해서는 일주일 이상 연속적으로 실험한 후에 평가할 계획이다.

5. 참고문헌

- ¹ NETEC-KEPCO, Vitrification Technology Development for Low- and Medium-Level Radioactive Waste (I), TR.96NJ17.J2000.3, pp. 15-67, 2000.
- ² US EPA, Method 1311 Toxicity Characteristic Leaching Procedure, *Federal Register*, **55**, No.60, 1990.
- ³ 이재건, 실무 고주파 가열, 진영사, 1995.
- ⁴ K. Vinjamuri, GLASSFORM-Version 1: An Algorithm for Generating Preliminary Glass Formulations for Waste Streams, INEEL/EXT-98-00269, March, 1998.
- ⁵ C.M. Jantzen and N.E. Bibler, *Product Consistency Tests (PCT) Method Version 3.0*, WSRC-TR-90-539, Westinghouse Savannah River Laboratory, Aiken, SC, 1989.
- ⁶ P. Hrma, J. D. Vienna, and M. J. Schweiger, Liquidus Temperature Limited Waste Loading Maximization for Vitrified HLW, *Ceramic Transactions*, **72**, pp. 449-456, 1996.
- ⁷ H.D. Schreiber and A.L. Hockman, Redox chemistry in candidate glasses for nuclear waste immobilization, *J. Am. Ceram. Soc.*, **70**[8], 591-594, 1987.