

플라즈마 토치를 이용한 비가연성 모의 방사물 용융실험

조천형, 문영표, 송명재
전력연구원

대전광역시 유성구 문지동 103-16

요 약

비가연성 방사성 폐기물로 발생하는 물질은 콘크리트, 유리, 석고, 철재류, 토사류 및 원자력발전소 계통에서 발생하는 필터류 등이며, 이들 폐기물 중 금속류를 제외한 물질들의 성분은 SiO_2 가 60%이상, CaO 3~12%, Al_2O_3 10% 미만으로 일반 유리의 성분과 유사하다. 따라서 이들 비가연성 방사성 폐기물을 최적의 혼합비로 용융하였을 경우 안정한 유리질의 고화체를 생성시킬 수 있다. 본 연구에서는 시료별로 조성이 다른 비가연성 모의 폐기물을 플라즈마 토치(60kW)와 용융로 등이 장착된 시스템에서의 용융 실험을 통해 약 20%정도의 부피 감용효과가 있음을 밝혀냈고, 생성된 용융 고화체에 대한 침출실험을 통하여 EPA의 규제치를 안정적으로 만족하는 건전성을 확인하였다.

1. 서 론

최근들어 고준위 방사물 유리화(Vitrification)에 대한 선진각국의 연구결과들이 긍정적으로 평가됨에 따라 중·저준위 방사성 폐기물에 대한 유리화 기술이 신중히 검토된 바 있으며, 이 결과 고준위 방사성 폐기물의 유리화에 비해 상대적으로 유해 핵종의 함유량이 적은 중·저준위 방사성 폐기물의 유리화는 기술적·경제적으로 충분한 가능성이 있는 것으로 평가되었다.¹⁾

방사성 폐기물 유리화의 기본개념은 다양한 형태의 용융로를 이용하여 방사물을 유리 또는 유리 화합물의 형태로 고화시키는 공정으로써 유기물은 열화시켜 파괴하고, 무기물과 금속성분은 유리결정 속에서 안정화시키게 된다. 유리화 개념은 기타의 방사물 관리기법에 비해 그 특성상 상대적으로 몇가지 장점을 가지고 있으며, 가장 중요한 장점은 유리화된 방사물의 안정성이라 할 수 있다. 지금까지의 실험에 의하면 적절히 형성된 유리화 방사물은 다양한 침출 실험에서 뛰어난 안정도를 나타내는 것으로 보고되고 있다.²⁾ 또한 유리화에 사용되는 유리물질의 물성이 방사물의 조성에 영향을 거의 받지않는 것으로 파악되고 있으며 유기물과 무기물을 모두 처리할 수 있는 것도 이 기술의 장점으로 평가받고 있다.

중·저준위 방사성 폐기물은 크게 가연성 폐기물과 비가연성 폐기물로 구분될 수 있는데, 가연성 폐기물에는 방호복, 양말, 장갑, 신발, 비닐시트, 슈즈커버, 제염지 및 목재, 스폰지 등이 포함되고 비가연성 폐기물에는 콘크리트, 석고, 각종 필터류, 유리, 철제, 형광등, 모래 등이 포함된다. 본

연구원에서 수행된 “저준위 방사성 폐기물 유리화에 관한 타당성 연구”(’94. 11 ~ ’95. 10)를 통해 가연성 폐기물은 직접 유도전류 가열식 저온로(Cold-crucible Direct Induction Melter)를 이용하여 유리화 시키고, 비가연성 폐기물은 플라즈마 토치 용융로(Plasma Melter)를 이용하여 유리화시키는 것이 합리적이라는 결론이 도출되었고,³⁾ 비가연성 폐기물의 용융 고화체에 대한 안정성 확인을 위하여 용량 60kW의 플라즈마 토치를 이용한 비가연성 모의 폐기물에 대한 용융 실험을 수행하게 되었다.

본 연구에서는 시료별로 조성이 다른 비가연성 모의 폐기물을 용융 시킴으로써 폐기물의 조성 변화로 인한 최종 용융고화체의 부피 감소효과를 조사하고, 화학 내구성 시험인 TCLP(Toxicity Characteristic Leaching Procedure) Test를 통해 생성된 용융 고화체에 대한 건전성 분석하였다.⁴⁾

2. 실험

2.1 플라즈마 토치 용융시스템

본 연구 사용된 플라즈마 용융 시설의 플라즈마 토치는 전형적인 solid type의 토치이고, straight polarity 연결 방식을 취하고 있으며 사용 전원은 DC이다. 토치의 전극은 수냉각되는 주전극선과 기동 아크를 발생시키기 위한 보조전극이 연결되어 있다. 보조 전극선은 절연된 구리 도선을 통해 토치의 앞부분인 노즐까지 연결되어 주전극선인 텅스텐 solid 사이에 절연 파괴에 의해 기동 아크를 발생시키게 된다. 이러한 기동아크의 발생은 비이송식(non-transferred) 방식으로 볼 수 있으며, 발생된 초기 점화 불꽃은 주 플라즈마 발생의 매개가 된다. 초기 기동 아크는 용융로 하부의 전극과 전기적으로 통할 수 있는 용융로 내부 모재와 접촉하여 주 플라즈마를 발생시키는 데 이용된다. 따라서 주 플라즈마 불꽃이 플라즈마 토치의 텅스텐 주전극선과 용융로 하부의 전극에 의해 발생되므로 이송식(transferred) 방식의 토치라 할 수 있다. 토치의 재질은 스테인레스강, 구리합금, 텅스텐 합금, 알루미늄 초자류, 기타 절연성 폴리머이다. 이 중 중요 부품인 주 전극 solid는 텅스텐 96%와 토륨 4%로 이루어진 합금이며, 토치의 각 부위를 결합하는 링은 황동 재질이다. 노즐은 열전도와 전기전도도를 고려하여 구리로 제조되었고, 기타 토치의 몸체부는 스테인레스강으로 제조되었으며, 기체 공급과 냉각수 공급을 위한 배관은 구리관이 사용되었다. 절연이 필요한 부분은 폴리프로필렌 계통의 합성수지가 사용되었다.

용융로는 외부강피에 의해 보호되는 내화물로 구성되어 있으며, 회분식 공정에 적합하도록 설계되어 있다. 용융로 내부 직경은 250mm, 깊이는 250mm이며, 전체 높이는 500mm이다. 1회분에 대한 용융 용량은 5kg정도이다. 용융로 하부 내화물에는 하부전극선이 장치되어 있으며, 용융물의 배출을 위해 전체 용융로가 기울어지는 기능을 가지고 있다. 용융로가 경사지도록 기울어졌을 때 원활한 용융물 배출을 위해 배출구가 용융로 상부에 마련되어 있으며, 개방형인 용융로 상부를 밀폐할 수 있는 덮개가 마련되어 있다. 용융로에 장착된 부속계통으로는 플라즈마 토치의 상하 운동을 위한 mast가 존재하며, 조절기를 통해 운전자가 조종한다. 플라즈마 토치가 용융로에 장착되는 방식은 mast에 연결된 토치 arm에 외부 수냉 jacket에 결합하는 것이며, jacket 하부의 구멍으로 플라즈마 불꽃이 방출된다. 용융로 상부에는 배기가스의 배출을 위한 덕트가 존재하며, 후단의 집진기에 의해 강제 배기된다.

전력공급장치는 (주) 코리아 웰딩사의 제품으로 정전압 또는 정전류 운전이 가능하도록 설계되어 있으며 정전류 방식으로 공급되는 전류는 500 ~ 700A 이고, 이차 무부하 전압은 220V, 부하

전압은 120V이다. 배기 시스템은 분진과 가스를 배출하기 위한 배출관과 파이프내의 압력을 낮추기 위한 정압펌프 그리고 배기구 끝에 장착된 집진장치로 이루어졌다. 또한 용융로 상부를 개폐식으로 운전할 수 있으며, 작업의 용이성을 위해 로상부를 개방하였을 경우에는 시설 상부에 마련된 배출구를 이용해 분진과 가스제거를 할 수 있도록 하였다. 용융물의 배출은 노전체를 유압을 이용해 기울여서 배출구로부터 용융물을 흘려 내보낼 수 있도록 하였고, 배출구를 빠져나온 용융물은 주형틀로 부어져 냉각되도록 하였다. 이에 대한 전체적인 플라즈마 토치 용융시스템의 개략도를 그림 1에 나타내었다.

2.2 모의 폐기물의 제조 및 용융

용융 실험에 사용된 시료는 콘크리트, 유리, 모래 및 금속류를 혼합하여 7가지의 다양한 혼합비를 가진 모의 폐기물로 구성되었다. XRF(X-Ray Fluorescence)를 이용한 원료 모의 폐기물질(콘크리트, 유리, 모래)에 대한 총합량 분석을 통해 용융전 폐기물의 화학적 조성을 분석하였고, 이를 용융 실험후 용융 고화체의 총합량 분석 값과 비교함으로써 용융 실험 및 총합량 분석의 신뢰도를 추정할 수 있도록 하였다.

플라즈마 토치 용융로는 거의 모든 종류의 방사성 폐기물을 전처리없이 처리할 수 있지만, 방사능 핵종 중 상대적으로 낮은 휘발점을 갖는 방사성 Cs의 상당부분이 배기체로 유입되어 차폐비용의 증가와 함께 2차 폐기물 발생량이 증가하게 된다. 따라서 방사성 폐기물에 존재하는 방사성 핵종의 배기체 계통으로의 유입을 억제하고 용융중에 용융 고화체 내로 최대한 포집될 수 있는 조건을 찾기 위하여 Cs-137의 동위원소인 Cs-133의 화합물 Cs_2CO_3 를 모의 폐기물에 첨가하여 용융 고화체에서의 Cs 포집률을 조사할 수 있도록 하였다. 이에 대한 모의 폐기물 용융 시료의 조성을 표 1에 나타내었다.

2.3 용융 고화체의 건전성 실험

용융 고화체의 건전성 시험에서 다루게 되는 분석 항목은 비중, 압축강도 시험, 총합량 시험, 용출시험, 침출시험, 온도순환 시험, 침수 시험 등이 있으나, 시료의 정형화가 필요한 압축강도 시험, 침출시험, 온도순환 시험은 제외하고, 비중시험, 총합량시험, 용출시험 대한 항목만을 실시하였다.

비중의 측정에는 모의 폐기물의 비중과 용융 고화체의 비중을 비교함으로써 감용비를 산출하기 위한 자료로써 이용된다. 용융 고화체의 비중은 건조상태의 용융 고화체 질량을 측정하고 메스실린더에 일정량의 물을 채워둔 상태에서 용융고화체의 부피를 측정함으로써 이루어졌다.

총합량 시험은 XRF분석기를 이용하는 방법과 Microwave Digestion을 이용하는 2가지 방법을 병행하여 실시하였는데 XRF를 이용한 분석은 산화물의 정량분석을 위하여 Microwave Digestion 방법은 유해물질의 유리고화체내 농도를 알아보기 위하여 사용하였다.

XRF를 이용한 총합량 분석을 요약하면 다음과 같다. 우선 분말화된 시료를 2~3g 취하여 시료를 석영 도가니에 담아 오븐에서 30정도 태운 뒤 태우기 전 시료의 무게와 태운후의 무게를 측정하여 LOI(Loss of Ignition)을 계산하게 된다. LOI의 목적은 bead제작 전에 시료내의 휘발성분들을 미리 휘발시켜 bead를 깨끗하게 유지하는데 있다. 태운 시료를 데시케이터에서 실온으로 냉각시킨 후, bead를 제조하기 위해 동전모양의 백금 도가니에 시료와 $Li_2B_5O_7$ 을 1:5의 비율로 섞어 bead 제조장치에 백금도가니를 위치시킨 후 20~30분 정도 토치로 백금 도가니를 가열한다. 시료를 녹여 도가니의 모양으로 bead를 성형시켜 XRF분석기에서 정량분석을 하게 된다.

Microwave Digestion을 이용한 함량 분석은 Milestone사의 기기를 사용하여 이루어졌으며, 그

방법은, 우선 질산 4mL, 과염소산 2mL를 넣고 250W에서 5분, 400W에서 10분, 600W에서 10분, 250W에서 5분동안 소화시킨 후 불화수소산 4mL를 넣고 250W에서 5분, 400W에서 10분, 600W에서 10분, 250W에서 5분 동안 소화시켰다. 시료에 따라 이 순서를 한 주기로 하여 3~5주기를 되풀이하여 시료를 완전히 녹이고, 이 시료를 검액으로 하여 ICP-MS(Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometer)로 분석하였다.

용출실험은 용융 고화체를 최종 처분한 후 천재지변과 같은 각종 사고에 대한 고화체의 안정성 여부를 확인 하기위한 중요한 실험이다. 최종 처분지에서 용융 고화체가 직면할 수 있는 위험은 물과의 접촉으로 인한 방사능과 유해 물질의 유출인데 용출 시험을 통해 이런 상황 하에서의 용융 고화체의 안정성을 알아볼 수 있다. 용출 시험 방법은 각국마다 다른 시험 방법을 규정하고 있으며 국내에서도 KLT(Korean Leaching Test)를 규정하고 있으나, 국제적으로 가장 공인받고 있는 EPA의 TCLP Test 방법에 따라 용출 특성을 분석하였다.⁴⁾ TCLP에서 고체상 시료를 표면적 $3.1\text{m}^2/\text{g}$ 이상이거나, 9.5mm체를 통과한 시료로 규정하고 있으며, 본 시험에서는 소화시험에서 사용된 분말화된 시료를 이용하였다. 이 방법은 분말화된 시료를 추출액과 1:20(질량기준)으로 섞어 Polypropylene재질의 500mL병에 담아 회전 전도식 교반 장치에 넣고 18 ± 2 시간 동안 $22\pm 3^\circ\text{C}$ 에서 $30\pm 2\text{rpm}$ 으로 용출하는 방법이다.

3. 실험결과 및 토론

감용비 측정을 위한 비중 측정결과 용융전 시료의 평균 비중은 약 $2.20\text{g}/\text{cm}^3$ 으로 나타났다. 용융후의 유리 고화체에 대한 평균 비중 약 $2.77\text{g}/\text{cm}^3$ 으로 측정되었다. 시료 중에서 콘크리트 600g, 유리 150g, 모래 150g이 혼합된 2번 시료가 $3.10\text{g}/\text{cm}^3$ 으로 가장 큰 값을 보였고, 가장 작은 값을 나타낸 시료는 콘크리트와 유리를 각각 150g, 모래 600g이 혼합된 4번시료로 비중은 $2.52\text{g}/\text{cm}^3$ 로 측정되었다. 모의 폐기물의 용융에 의한 평균 감용비는 0.798로 측정되었으며, 이에 대한 결과는 표 2에 나타내었다.

XRF에 의한 산화물 함량 분석 결과에 따라 CaO와 SiO_2 의 비를 나타내는 염기도를 살펴보면 산화물의 열러 가지 형태중 SiO_2 의 함량이 가장 적은 시료가 가장 큰 염기도 수치를 보였고, CaO의 함량이 가장 작은 시료가 가장 적은 염기도 수치를 나타내었다. 용융 고화체중 최대 염기도를 보이는 시료는 6번 시료로서 염기도가 0.101 이었고, 최소 염기도를 나타내는 시료는 5번 시료로서 염기도가 0.025 이었다.

Microwave Digestion에 의한 용출실험 결과는 표 3에 나타난 바와 같이, 검출조사대상 원소들 중 수은을 제외한 모든 원소들이 검출되었다. 주요 유해 무기물질들을 많이 함유하고 있을수록 본 연구의 목적에 부합한다는 측면에서 1번과 5번 시료가 적절한 조성을 가지고 있는 것으로 나타났고 4번 시료가 가장 부적절한 조성을 가지고 있는 것으로 드러났다. 한편 아연의 경우 7번 시료에서 Se의 경우 4번시료에서 검출이 되지 않았는데 다른 시료들의 검출량과 비교해 볼 때 분석과정에서 문제가 있었던 것으로 보인다.

표 4에 표시한 바와 같이 TCLP Test결과 전체 시료가 Se을 제외하고는 EPA에서 규정하고 있는 규제치를 안정적으로 만족하는 것으로 나타났으며 Microwave를 이용한 소화실험에서도 검출되지 않았던 수은은 TCLP 실험에서도 검출되지 않았다.

유리고화체 내의 Cs함유량은 콘크리트 400g, 유리 100g, 모래 400g을 용융한 6번시료의 함유

량이 2964.91mg/kg으로써 가장 낮았고, 콘크리트 100g, 유리 400g, 모래 400g을 용융한 7번시료의 함유량이 5597.82mg/kg으로써 가장 높았다. 그러나 용융대상물에 포함 시킨 Cs의 양이 5000mg/kg 이므로 7번 시료의 함유량이 5597.82mg/kg인 것은 용융실험을 회분식으로 반복하는 과정에서 전 회 실험에 잔존하고 있던 Cs의 일부가 포집된 것으로 판단된다. 한편 방사성 핵종의 용출실험 결과 콘크리트 함유량이 증가할수록 Cs의 용출량이 증가하는 경향을 보였고 이를 그림 2에 도시하였다.

4. 결 론

플라즈마 토치를 이용하여 모의 방사물에 대한 용융실험을 수행한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1. 모의 방사물의 용융전 비중과 용융후의 용융 고화체 비중을 측정한 결과 약 20%정도의 감용효과가 있음이 밝혀졌다.
2. 용융 고화체에 대한 TCLP 용출시험 결과 모든 시료가 EPA의 규제치를 안정 적으로 만족시켰다.
3. 용융 고화체 내의 Cs함량을 분석한 결과 콘크리트의 함유량이 증가할수록 Cs의 용출량이 증가하는 경향이 있었다.

참고문헌

- 1) J. K. Park, et al., "Technical and Economical Assessment for Vitrification of Low-Level Radioactive Waste from Nuclear Power Plant in Korea," Waste Management '96, Tucson, Arizona, 1996
- 2) R. P. Denault, "Vitrification of Low-Level Radioactive Waste," EPRI TR-105912, 1996
- 3) 전력연구원, "저준위 방사성 폐기물 유리화에 관한 타당성 연구", 1995
- 4) US EPA, "Toxicity Characteristic Leaching Procedures, Method 1311, Test Method for Evaluating Solid Waste SW-846", 1990

표 1. 모의 폐기물 구성

시료번호	용융 대상물 조성					
	폐 기 물			Cesium (5g/kg)	용량	염기도
1	콘크리트 300g	유리 300g	모래 300g	Cs ₂ CO ₃ 5.553g	금속류 4000g	0.134
2	콘크리트 600g	유리 150g	모래 150g	Cs ₂ CO ₃ 5.553g	금속류 4000g	0.197
3	콘크리트 150g	유리 600g	모래 150g	Cs ₂ CO ₃ 5.553g	금속류 4000g	0.137
4	콘크리트 150g	유리 150g	모래 600g	Cs ₂ CO ₃ 5.553g	금속류 4000g	0.076
5	콘크리트 400g	유리 400g	모래 100g	Cs ₂ CO ₃ 5.553g	금속류 4000g	0.175
6	콘크리트 400g	유리 100g	모래 400g	Cs ₂ CO ₃ 5.553g	금속류 4000g	0.132
7	콘크리트 100g	유리 400g	모래 400g	Cs ₂ CO ₃ 5.553g	금속류 4000g	0.098

표 2. 모의 폐기물의 감용비

시료번호	용융전 비중 (g/cm ³)	용융후 비중 (g/cm ³)	감용비 (용융전 비중/용융후 비중)
1	2.20	2.81	0.783
2	2.22	3.10	0.716
3	2.30	2.66	0.865
4	2.09	2.52	0.829
5	2.28	2.73	0.835
6	2.14	2.77	0.773
7	2.20	2.79	0.789
평균	2.20	2.77	0.799

표 3. 용융 고화체의 총합량 분석 결과(MD)

시료 번호	분석대상원소 (mg/kg)					
	Cr	As	Se	Cd	Ba	Pb
1	282.21	1432.41	47.43	37.94	222.92	177.87
2	148.86	1108.40	48.09	27.48	125.95	48.09
3	142.34	558.39	37.23	10.95	247.45	15.33
4	59.54	522.14	0	11.45	148.86	43.51
5	201.54	1773.51	66.22	46.07	236.08	54.70
6	78.95	435.67	29.24	8.77	143.27	14.62
7	187.69	902.68	44.69	20.85	211.52	113.21

표 4. 용융 고화체에 대한 TCLP Test

시료번호	분석대상 원소 (mg/L)						
	Cr	As	Se	Cd	Ba	Hg	Pb
규제치	5	5	1	1	100	0.2	5
1	0	1.19	2.31	0.03	0.48	0	0.06
2	0	0.99	4.08	0.08	0.51	0	0.09
3	0	1.09	4.33	0.09	0.45	0	0.10
4	0	1.09	5.23	0.12	0.15	0	0.01
5	0.03	3.89	5.46	0.18	0.13	0	0.11
6	0	0.89	3.22	0.05	0.17	0	0.08
7	0.02	2.99	4.84	0.11	0.15	0	0.13

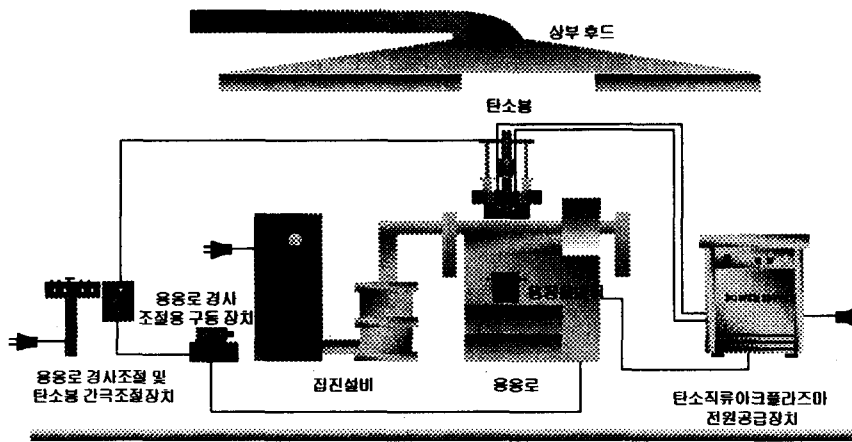


그림 1. 플라즈마 토치 용융시설의 개략도

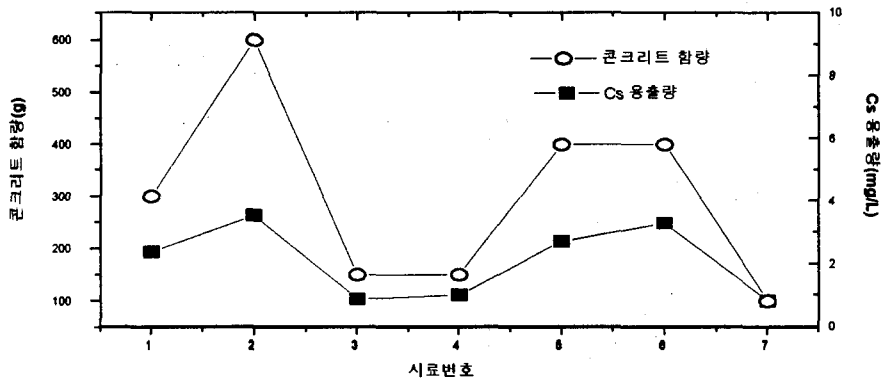


그림 2. 콘크리트 함량에 따른 Cs의 용출특성