

봉산농축폐액 유리화용 유리조성 연구

조현제, 지평국, 신상운

한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1번지

cho@khnp.co.kr

1. 서론

봉산농축폐액에 대한 고화는 80년대부터 시멘트고화, 파라핀고화 및 폴리머를 이용한 고화처리를 하고 있으나, 고형물에 대한 내구성, 열화반응 등에 대한 최적의 적합성을 재연구하고 있다[1-2]. 국내의 대부분의 원전에서는 현재까지 방사성폐기물 저감방안으로 시멘트고화 및 폴리머고화를 수행해오고 있으며, 이와 더불어 폐기물의 안정적/영구적 처리방안의 일환으로 유리화의 타당성이 활발히 연구되고 있다. 유리화 기술은 중금속 및 방사성 핵종들과 같은 유해한 물질들을 일반적인 유리구조에 가둬 환경에 누출되지 않도록 영구적으로 격리시키는 기술로서, 시멘트고화나 폴리머 고화기술이 방사성 핵종들을 물리적으로 가두어 두는 기술인데 반해 유리화는 분자들간의 상호 화학적 결합을 이루도록 하는 기술이다. 따라서 유리화는 우수한 물리·화학적 내구성을 제공하게 되며, 폐기물의 높은 감용 효과도 얻을 수 있다. 특히 대부분의 원소를 유리 속에 포함시킬 수 있기 때문에 방사성폐기물을 유리 속에 용융시킨 다음 철제용기에 부어 영구처분장에 안전하게 처분할 수 있는 장점이 있다.

폐기물을 유리화하기 위한 최적의 유리조성은 유리첨가제(유리조성체) 선정, 후보유리 선정, 실험실적 유리 제조 및 특성 평가, 실증시험 단계를 거쳐 결정된다. 유리화 대상 폐기물 내 무기물이 첨가제와 함께져서 유리화 공정과 유리고화체 품질을 만족하는 유리조성으로 만들어져야 하는데 우선적으로 분석된 폐기물의 무기물 조성을 근거로 적절한 첨가제 즉, 유리조성체를 선정한다. 본 연구는 봉산농축폐액의 유리화 타당성 조사 연구의 일환으로 유리화용 유리조성을 찾아 구성원소의 분포를 비교해 보고자 한다.

2. 모사 및 시료제작

봉산농축폐액에 적합한 유리고화체 조성을 선정하기 위해 전산코드(GlassForm)를 사용하여 여러 가지 후보조성에 대한 물리·화학적 특성을 모사하였다. 전산코드에 입력하는 기본 자료는 대상 폐기물의 조성이며, 코드에서는 유리조성체의 조성과 고화체내 함유량을 변화시켜 가면서 최종 유리고화체의 특성을 확인하게 된다. 사용 인자로는 유리고화체 점도분포, 전기전도도, 침출률분포 및 고화체 내 폐기물 성분 함량 감용비 지수 등이다. 봉산농축폐액에 대한 유리 조성은 봉산농축폐액을 단독으로 유리화하는 경우와 W1(가연성잡고체:이온교환수지=5:1) 폐기물과 혼합하여 유리화하는 두 가지 경우에 대해 전산코드를 이용하여 선정한다. W1 폐기물의 혼합비는 해당원전의 연간 실폐기물 생성 자료를 근거로 한 값이다. 봉산농축폐액 단독 유리화 및 W1 폐기물과 혼합 유리화시에 대해 산출된 후보유리의 조성은 표 1과 같다. 후보유리의 내침출성을 실험적으로 평가하기 위하여 화학약품(raw chemical)으로 유리 배치를 만들었다. 사용한 화학약품들은 98% 이상 순도로서 제조회사들이 제공한 순도를 기준하여 혼합비를 조정하였다. US DOE PCT(Product Consistency Test)는 고화체의 안정성, 균일성 및 재현성 있는 구성을 등을 측정하기 위한 견고성 시험으로서 유리고화체내 원소들의 침출거동을 기준(benchmark) 유리와 비교하는데 이용된다. 본 연구에서는 봉산농축폐액의 유리화를 위한 두 가지 유리조성체에 대해 PCT를 수행하였다. 시험에 사용한 후보유리는 BG와 W1BG이다. PCT를 수행하기 위해 유리고화체를 파쇄한 후 $150\mu\text{m}$ (100mesh) 크기의 입도크기 분석용 채를 통과시키고 $70\mu\text{m}$ (200mesh) 크기의 채에서 걸러진 유리 5g 정도를 취한 다음 스테인레스강(SUS 304L) 용기에 넣고 유리 무게의 10배에 해당하는 ASTM Type I(미국표준협회, 원자결합 등에 사용하는 초순수 등급) 탈이온수로 채운 후 밀봉하였다. 이 경우 유리의 표면적과 침출수의 체적비(SA/V)는 2000m^{-1} 이다. 미리 90°C 로 예열된 오븐에 넣고 7일이 지난 후 꺼내어 침출수 중 1mL 을 추출해 1% HNO_3 20mL 용액이 담긴 바이얼에 담아 분석하였다. 유리고화체로부터 침출되어 나온 원소들의 침출률은 미국표준유리(SRL-EA : Savannah River Laboratory- Environmental Assessment)의 침출률과 비교하였다. 또한, 남아 있는 침출수는 실온으로 냉각시켜 즉시 pH를 측정하였다. 침출시험 후 녹아나온 성분들의 농도를 분석하기 위하여 원자흡광분석법(AAS : Atomic Absorption Analysis) 또는 유도결합플라즈마 질량분석법(ICP-MS : Inductively Coupled Plasma Mass

Spectroscopy)을 이용하였다. 유리고화체 2종에 대한 PCT 침출시험 조건 및 시험 결과는 표 2와 같다.

3. 결과 및 고찰

봉산농축폐액의 유리화를 위한 2종의 유리조성체와 유리고화체를 개발하였다. 각 유리는 봉산농축폐액용 단독유리화와 W1 폐기물과 봉산농축폐액을 혼합하여 유리화하는 경우를 고려한 것이다. 봉산농축폐액 건조물 내 무기물을 함량을 기준으로, 봉산폐액을 단독 유리화시에는 35%, W1 폐기물과 4:1의 비율로 혼합 유리화할 경우에는 40%까지 유리고화체 내에 loading 할 수 있는 것으로 나타났다. 실험적으로 모의 제조한 유리고화체의 침출성은 SRL-EA 표준유리 보다 수십 배 이상 낮은 것으로 나타났다. 후보유리의 침출수 pH는 9.7~9.8로 나타났다.

4. 결론

유리 조성체의 용융 점도와 고화체 침출시험을 위해 봉산폐액용 유리조성체 및 유리고화체 유리를 제조하였다. 봉산농축폐액용으로 개발한 유리 조성은 국제적으로 인증된 PCT 침출시험으로 수행한 결과 유리고화체의 화학적 안전성을 유지하고 있는 것으로 나타났다. 향후에는 선정된 유리 조성으로 실증시험을 수행하여 유리고화체를 생산하고, 이에 대해 PCT 침출시험과 압축강도 시험을 수행함으로써 고화체의 내구성을 최종 입증할 예정이다. 또한 유리화설비의 경제성 제고를 위한 최대 봉산농축폐액 투입률 및 투입비 등을 평가할 예정이다.

5. 참고문헌

- [1] Combined Methods for Liquid Radioactive Waste Treatment, IAEA-TECDOC-1336, (2003).
- [2] B. Y. Min et al., Study on the Vitrification of Mixed Radioactive Waste by Plasma Arc Melting, J. Ind. Eng. Chem., Vol. 13(1), 57-64(2007).

표 1. 봉산폐액용 후보유리 조성, 계산된 물성(단위: wt%)

조 성	봉산농축폐액 단독유리화		W1+봉산농축폐액 혼합유리화	
	조성체 (BF)	고화체 (BG)	조성체 (W1BF)	고화체 (W1BG)
Li ₂ O	14.4	9.4	12.9	7.7
B ₂ O ₃	-	29.8	-	27.2
Na ₂ O	1.9	6.1	4.5	7.6
Al ₂ O ₃	21.0	13.7	21.3	13.6
SiO ₂	59.6	38.8	57.4	38.3
기타	3.1	2.2	3.9	5.6
합 계	100	100	100	100
물 성	점도	168	6	153
	전기전도도	-	62	-
	밀도	-	2.47	-
			2.51	

표 2. 봉산농축폐액 후보유리의 침출시험 결과

항 목	봉산폐액용 유리고화체	W1+봉산폐액 유리고화체	기준유리
시료명	BG	W1BG	SRL-EA
침출률 (g/m ²)	Si	0.01	< 2
	B	0.46	< 9
	Na	0.12	< 6
	Li	0.39	< 5