

## 방사성 폐기물 시멘트 고화체로 부터의 $^{137}\text{Cs}$ 및 $^{90}\text{Sr}$ 용출특성 연구

황선태 · 이경주 · 최길웅

한국표준연구소

박현희 · 김환영

한국에너지연구소

### =초록=

방사성 폐기물 처리, 처분의 안정성 평가를 위하여 방사성 고화체에서 용출되는  $^{137}\text{Cs}$  과  $^{90}\text{Sr}$  의 방사능 용출율과 누적용출분율을 계측·분석하여 시멘트를 사용한 방사성 고화체에서 Cs<sup>+</sup>과 Sr<sup>++</sup>의 용출특성을 조사하였다. 모의 방사성 폐액의 물농도, 시멘트의 종류, 첨가물질 및 붕산농도 등을 변화시키면서 sodium silicate 법과 중화법으로 원주형 시멘트 고화체를 제작하였다. 여기에서 가압경수로형 원자력 발전소의 모의 농축폐액의 시멘트 고화체로부터 용출연구는 IAEA의 추천방법에 따라서 수행되었다. 실험결과는 대부분 이미 보고된 연구자료들과 잘 일치하고 있으나 수밀성 시멘트 고화체에서는 상당히 높은 방사능 용출율을 보여주고 있음으로써 방사성 폐기물 고화체에 그 사용이 적합하지 않음을 알게 된다.

### 서론

원자력 발전소의 가동 기수의 증가와 관련업체, 연구기관 및 대학에서 방사성 동위원소를 이용하는 빈도의 증가로 불가피하게 발생되고 있는 많은 양의 방사성 폐기물을 안전하게 처리·처분하는 문제는 근래에 중요한 연구과제로서 그 해결이 시급하게 요구되고 있다. 현재까지는 방사성 폐기물의 영구적 처리·처분보다는 임시적 격리·저장하는 정도에 그치고 있었으며, 그 저장·보관 능력도 포화상태에 이르고 있는 실정이다<sup>1)</sup>. 따라서 방사성 폐기물에 대한 종합적인 연구가 수행되고 있으며 여러 가지 처리방법 중에서 시멘트를 이용하는 고화법이 비교적 경제적이고 용이한 방법으로 알려져 있다.

방사성 폐기물을 고화시키는 매질로서 수경성 시멘트, 아스팔트, 유기중합체 및 유리<sup>2)</sup> 등이 사용되는데 이러한 매질들을 사용하는 고화법이 선진국에서는 이미 상용화 또는 개발되고 있다. 이를 중에서 시멘트에 의한 고화처리 방법이 저준위 고체 및 액체 폐기물의 처리

에 가장 많이 쓰이고 있는데 그 이유는 토목공학에서의 풍부한 경험과 기초 지식을 통하여 시멘트의 물리·화학적 특성이 잘 알려져 있고 시멘트의 사용 공정도 단순하기 때문이다. 한편, 저준위 폐기물 외에도 방사성 폐기 필터, 폐기 이온교환수지 등의 방사성 폐기물의 고화처리에도 시멘트가 널리 쓰이고 있다. 그리고 시멘트 고화체에 폴리머를 혼입하거나<sup>3)</sup> 특수시멘트를 사용하는 방법등에 의하여 고화체의 물리·화학적 특성을 개선하여 방사능 준위가 높은 고준위 폐기물을 고화처리하기도 한다<sup>4)</sup>.

여러가지 고화공정에 의해 처리되는 방사성 고화체의 물리·화학적 성질은 고화체 자체의 성질중에서도 특히 지하수에 의한 방사성 고화체로부터의 핵종의 용출특성은 폐기물 처분의 안전성 해석 평가에 매우 중요한 위치를 차지하고 있다. 그 이유는 방사성 폐기물을 지층에 저장 또는 처분하였을 때 방사성 핵종의 누출사고는 지하수에 의한 핵종의 용출에 기인되기 때문이다. 현재 우리나라에서 주로 발생되는 방사성 폐기물 고화체는 가압경수로형의 원자력 발전소에서 방출되는 방사성 폐기물을 시멘트로 고화한 것으로서 이것들은 결

표 1. Portland 시멘트의 화학적 조성

화합물성	화학적 조성	기호	중량비 (%)
Tricalcium silicate	3 CaO·SiO <sub>2</sub>	C <sub>3</sub> ·S	50
Dicalcium silicate	2 CaO·SiO <sub>2</sub>	C <sub>2</sub> ·S	24
Tricalcium aluminate	3 CaO·Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	C <sub>3</sub> ·A	11
Tetracalcium aluminoferrite	4 CaO·Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ·Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	C <sub>4</sub> ·A·F	8
기타			7

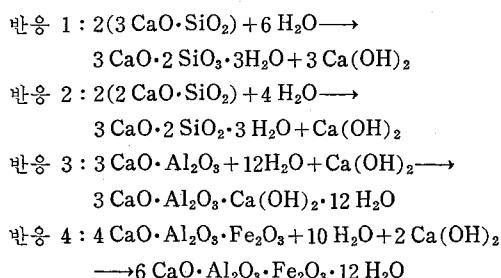
국은 지중에 영구적으로 처분되어야 할 시점에 놓여 있다.

따라서 본 연구에서는 고리 원자력 발전소 1,2호기에서 현재 수행하고 있는 시멘트고화방법에 유사한 조건으로 시멘트 고화체시료를 제작하여서 종류수와 저하수를 사용하여 고화체중에 혼입된 세슘이온(Cs<sup>+</sup>)과 스트론튬이온(Sr<sup>++</sup>)의 용출특성을 조사하였다.

## 고화 이론

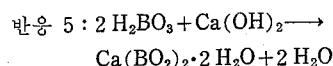
방사성 폐기물의 고화매질로 사용된 portland 시멘트는 표 1에 주어진 것과 같은 4가지 조성의 성분을 갖는다. 이 시멘트의 각성분은 모두 수화과정에서 물과 작용하여 (가) 산화칼슘·산화규소의 화합물, (나) 수산화 칼슘, (다) 칼슘, 알루미늄과 철의 화합물 등으로 이루어진 결정성 고체를 생성한다.

이러한 경화 과정을 화학반응식으로 나타내면 다음과 같다.



반응 1과 2에서는 C<sub>3</sub>·S와 C<sub>2</sub>·S가 물과 작용하여 tobermorite gel(3CaO·2SiO<sub>2</sub>)과 Ca(OH)<sub>2</sub>가 생성되고 반응 3과 4에서는 C<sub>3</sub>·A와 C<sub>4</sub>·A·F가 이미 생성된 Ca(OH)<sub>2</sub>와 결합하여 수화 결정화물을 생성함으로써 시멘트가 경화된다. 그러나 수화과정에서 많은 열이 발생하게 되므로 시멘트 고화체에 균열을 일으키는 요인이 되기도 한다. 한편, 가압경수로형 원자력 발전소에서는 1차 계통의 냉각수중의 봉산농도를 조절함으로써 원자로심에서의 핵분열율을 조절하고 있어서 1차 계통

에서 발생된 방사성 액체 폐기물은 봉산을 함유하게 된다. 이 액체 폐기물의 방사능의 양은 미량이고 봉산의 양도 극히 적기 때문에 방사성 폐기물 고화체의 양을 최대한 줄이기 위하여 증발·농축을 하게 된다. 그러나 봉산은 온도에 민감하여 가열하는 온도의 조건에 따라 결정화 되므로 고화공정조건 중 봉산농도는 주요 인자가 된다. 따라서 봉산의 농도를 중량비로 12 w/o 까지 증발·농축하여 고화처리하고 있다. 이 때 봉산은 반응 1과 2에서 생성된 Ca(OH)<sub>2</sub>와 쉽게 작용함으로써 반응 3과 4의 진행을 저체시키고 결국은 시멘트 고화의 결정적 단계인 수화결정화물의 형성을 방해한다<sup>5)</sup>. 여기서 봉산과 Ca(OH)<sub>2</sub>의 상호작용을 화학 반응식으로 표시하면 다음과 같다.



이 반응에서 생성되는 Ca(BO<sub>2</sub>)<sub>2</sub>·2H<sub>2</sub>O는 불용성 화합물로서 시멘트 표면을 둘러싸 물과의 작용을 억제함으로써 시멘트 고화를 더욱 방해한다. 이러한 봉산의 시멘트 고화방해작용을 방지하기 위하여 sodium silicate를 첨가하여 봉산을 불용성 borosilicate형으로 만든다. 고리 원자력 발전소 1호기에서는 봉산이온과 직접 작용하도록 sodium silicate를 봉산의 물(mole)수에 비하여 다량으로 첨가하여 봉산을 함유한 농축액체 폐기물을 고화처리하고 있으며 2호기에서는 산성의 농축액체폐기물을 우선 NaOH으로 중화시킨 후에 sodium borate 형태로 만들어서 1호기의 경우보다 소량의 sodium silicate를 첨가하여 고화처리하고 있다.

## 실험 방법

본 연구에서 시멘트 고화방법으로는 현재 고리원자력 발전소에서 채택하고 있는 조성과 함께 혼합하여 방사성 고화체를 만들었다. 고화체의 핵종 용출성을 조사하기 위하여 추적자로 사용된 방사성 핵종의  $^{137}\text{Cs}$

과  $^{90}\text{Sr}$  이었으며 정확한 용출율을 측정을 위하여 방사능 측정의 표준화 방법<sup>6)</sup>을 채택하였으며 방사능 용출 실험의 최종 결과는 고화체 전체의 방사능 초기량에 대한 누적된 방사능 용출량으로 누적용출분율,  $\frac{\sum A_i}{A_0} \cdot \left(\frac{V}{S}\right)$ , 을 시간에 대한 변화율을 그림으로 나타내었다.

여기서,

$A_i$ : 용출시간  $i$ 동안에 용출된 방사능 농도

$\Sigma A_i$ : 전체 용출시간 동안에 용출된 총 방사능 농도

$A_0$ : 용출실험 초기의 방사능 농도

$V$ : 고화체 시료의 체적

$S$ : 고화체 시료의 표면적

## 1. 모의방사성 폐액의 제조

일반적으로 중·저준위 방사성 폐기물 고화체의 핵 종 용출 특성 연구의 대상으로 사용하는 핵종은  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{60}\text{Co}$ 이다. 이들은 비교적 반감기가 길고 지하수에서의 용출특성이 높은 핵종들이다. 그러나  $^{60}\text{Co}$ 는 시멘트 경화 반응시에 강알칼리성을 떠드로 용해도가 매우 낮은 수산화 코발트 화합물로 되어 타핵종보다 용출율이 1/100 이하로 떨어지므로<sup>7)</sup> 본 실험에서는  $^{137}\text{Cs}$ 과  $^{90}\text{Sr}$ 을 대상으로 하였다. 모의 폐액 중  $\text{Cs}^+$ 과  $\text{Sr}^{2+}$ 의 농도는 고화체의 단위체적 당 각각  $8.36 \times 10^{-7}$  몰과  $5.4 \times 10^{-8}$  몰이 되도록 비방사성 물질로 희석하였으며 추적자로서 고화체 1개당  $^{137}\text{Cs}$ 과  $^{90}\text{Sr}$ 이 각각  $159\mu\text{Ci}$ 와  $200\mu\text{Ci}$ 가 되도록 첨가하였다. 여기서 비방사성 핵종의 이온농도는 미국의 중·저준위 방사성 폐기물 관리법 10 CFR 61에 규정되어 있는데로 방사성 시멘트 고화체에 의하여 험유 가능한 핵종의 최대 허용치에 해당되는 농도이다.

## 2. 방사성 고화체 제작

### 2-1. Sodium silicate 법(고리 1호기 방식)

시멘트와 sodium silicate 및 vermiculite의 배합비율을 중량비 45.9 : 42.7 : 11.4로 하여 만든 배합물을 polypropylene 용기에 넣고 중량비 12 w/o의 봉산을 함유하는 모의 방사성 폐액 30 ml를 첨가한 후 혼합하였다. 이때 폐액중에 봉산의 결정화를 막기 위하여 폐액의 온도를  $70^\circ\text{C}$  정도로 유지하면서 시멘트 배합체와 혼합하여 균일하게 섞어 3주간에 걸쳐 원주형 모양으로 경화시켰다. 이때 경화된 고화체의 크기는  $4.5\text{ cm} \phi \times 3.5\text{ cm}$  이었다.

### 2-2. 중화법(고리 2호기 방식)

시멘트와 무수규산(meta sodium silicate) 배합비율

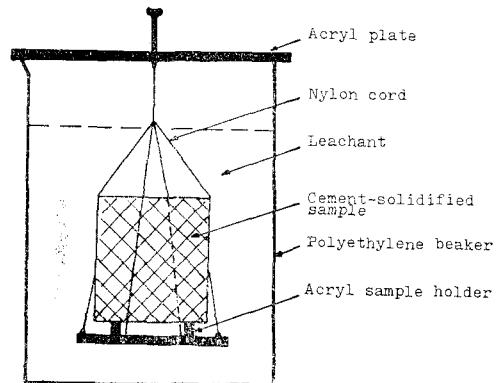


Fig. 1. Arrangement of cement-solidified radwaste.

을 중량비 9 : 1로 하여 만든 배합체 70 g polypropylene을 용기에 넣고 pH 8로 중화된 모의 방사성 폐액 20 ml을 실온에서 첨가하여 고리 1호기 방식과 같은 방법으로 혼합하여 원주형 모양으로 경화시켰다. 이 때 고화체의 크기는  $4.5\text{ cm} \phi \times 3\text{ cm}$  이었다.

### 2-3. 기타(고리 5호기 방식)

고리 1, 2호기에서의 portland 시멘트 대신에 수밀성 시멘트를 사용하였으며 한편 sodium silicate 대신에  $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  및  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 를 중화법에서와 같은 방법으로 배합하여 고화체를 제작하였다. 여기서  $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  및  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 의 혼합물을 사용한 이유는 이 혼합물도 sodium silicate처럼 모의 방사성 폐액중에 봉산이온과 반응하여 borate 염을 생성함으로써 봉산의 시멘트 경화 방해작용을 방지할 수 있기 때문이다. 이 때 고화체의 크기는  $4.5\text{ cm} \phi \times 3\text{ cm}$  이었다.

## 3. 용출실험

방사성 고화체로 부터의 핵종 용출 실험은 1950년대 후반부터 많은 연구가 수행되어 왔으며 최근에는 국제 원자력기구(IAEA)가 추천하는 실험방법<sup>8)</sup>이 널리 보급되어 있다. 본 실험에서는 경화된 고화체를 450 ml의 용출용액(leachant)이 들어있는 polyethylene 바이커속에 넣어 그림 1에서와 같이 고화체 전체 표면으로부터 방사성 핵종의 용출이 가능하도록 하였다. 용출실험 중에는 용출용액의 자연증발을 최소화하기 위하여 상온에서 적정 방법으로 용출된 액체(leachate)를 재취하여 핵종의 방사능 농도를 측정하였다. 용출용액으로서 중류수와 지하수를 사용하여 IAEA의 추천방법에 따라 용출실험을 수행하였다.

## 4. Leachate 시료 준비

### 4-1. $^{137}\text{Cs}$ 측정시료

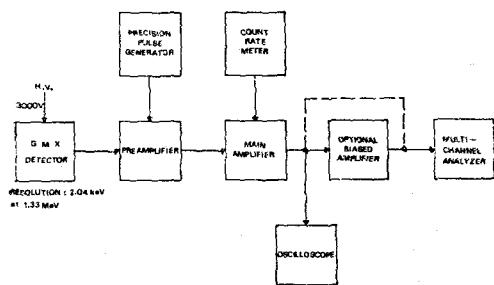


Fig. 2. Block diagram of  $\gamma$ -ray spectrometry system.

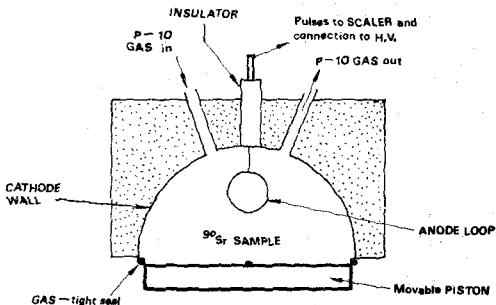


Fig. 4. Windowless proportional detector.

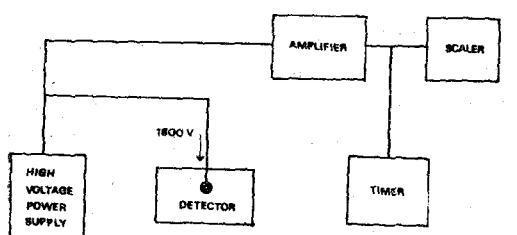


Fig. 3. Block diagram of  $2\pi$  proportional counting system.

$^{137}\text{Cs}$ 는 에너지가 661.645 keV인 단일  $\gamma$ -선 방출핵종으로서 방사능 측정을 위하여 검출효율과 에너지 분해능이 우수한 GMX 검출기(ORTEC 30210-S)를 사용하였다. 따라서  $^{137}\text{Cs}$  측정 시료는 450 ml의 leachate를 polyethylene Marinelli beaker에 옮겨 넣음으로써 그대로 준비되었다.

#### 4-2. $^{90}\text{Sr}$ 측정시료

$^{90}\text{Sr}$ 은 순  $\beta$  입자 방출핵종이기 때문에 방사능 측정을 위하여 P-10가스 유입형  $2\pi$  비례계수기(NMC PC-5)를 사용하였다. 따라서  $^{90}\text{Sr}$  측정 시료는 자연농축된 leachate로부터 5 ml의 용액을 마이크로 피펫으로 채취하여 S.S. planchet( $5\text{ cm}^2$ )에 옮겨 수분을 증발·건조시켰다.

#### 용출 방사능 측정

방사성 고화체로부터 용출된  $^{137}\text{Cs}$  및  $^{90}\text{Sr}$  핵종의 방사능 측정을 위하여 용출실험 기간중 처음 7일간은 매 일 1회씩, 그후 8주간은 매주 1회씩 leachate를 채취하여 방사능을 측정하였으며 leachate 시료를 채취할 때마다 새로운 leachant를 보충하면서 용출 방사능 측정을 계속하였다.

#### 1. $^{137}\text{Cs}$ 의 용출 방사능

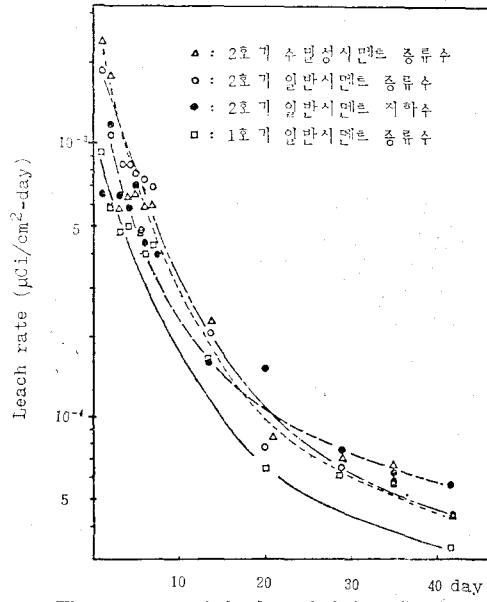
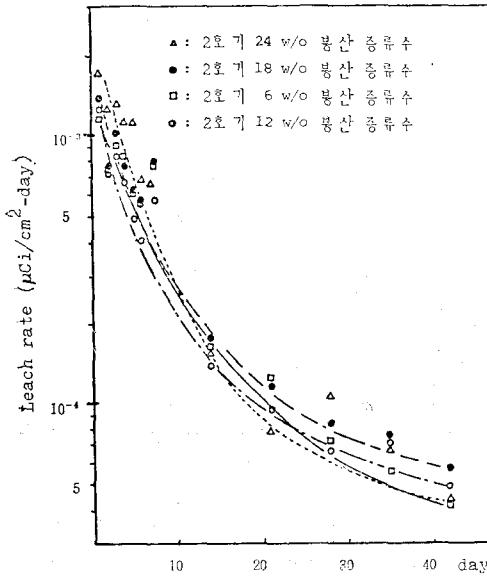
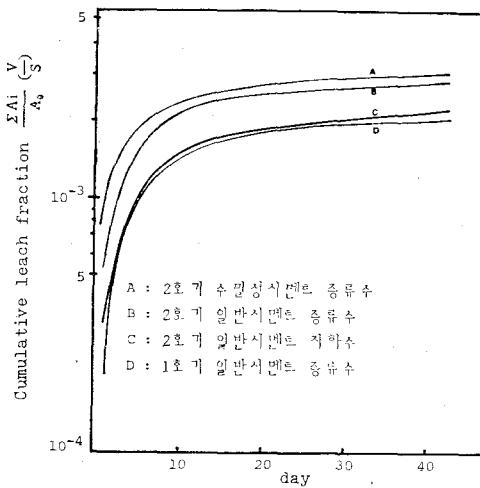
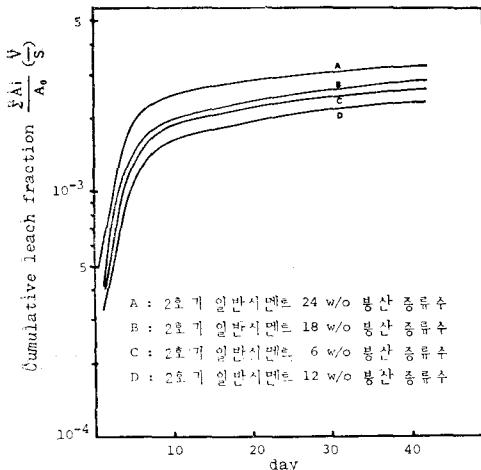
고화체로부터 용출된  $^{137}\text{Cs}$ 의  $\gamma$  방사능은 GMX 검출기와 다중파고 분석기(MCA: ORTEC 7032)를 이용한  $\gamma$ -선 분광계측 방법에 의하여 측정되었다.  $^{137}\text{Cs}$  leachate 시료를 담고 있는 Marinelli 비아커는 시료의 geometry를 고려하여 검출기로부터 일정한 거리에 고정하였다. Fig. 2는  $\gamma$ -선 분광계측장치의 구성도이다. 여기서 GMX 검출기의 에너지 분해능은  $^{60}\text{Co}$ 의  $\gamma$ -선 에너지 1.33 MeV에 대하여 FWHM=2.04 keV 이었고 검출기의 효율은  $^{137}\text{Cs}$ 의  $\gamma$ -선 에너지 661.645 keV에서  $\epsilon=0.0453$ 이었다.

$\gamma$ -선 spectrum 분석 및 방사능 결정을 위하여 국제도량형국(BIPM)에서 국제상호비교용으로 제조된 표준방사선원  $^{134}\text{Cs}$ 를 사용하여 에너지 및 검출기효율을 교정하였으며 MCA에 부착된 ORTEC 7050 MICRO-COMPUTER를 사용하여 방사성고화체로부터 용출된  $^{137}\text{Cs}$  방사능을 구하였다.

#### 2. $^{90}\text{Sr}$ 의 용출 방사능

용출된  $^{90}\text{Sr}$ 의 방사능은 P-10 가스 유입형  $2\pi$ 비례계수장치를 사용하여 측정하였다. 채취된 leachate를 planchet에서 증발, 건조시킨  $^{90}\text{Sr}$  시료가 공기중으로 비산되는 것을 방지하기 위하여 얇은 polyethylene film으로 planchet을 포장하여 시료의 방사능을 측정하였다. Fig. 3은  $2\pi$  가스유입형비례계수장치의 구성도이다. 반구형 검출기에 인가된 전압은 1800 V이었고 검출기의 계수효율  $\epsilon=0.329$ 이었다. 한편, Fig. 4는 반구형 비례검출기의 자세한 구조와  $^{90}\text{Sr}$  시료의 위치를 보여주고 있다.

입자 계수 및 방사능 결정을 위하여 국제도량형국(BIPM)에서 국제상호비교용으로 제조된  $^{134}\text{Cs}$  표준선원을 사용하여 검출기효율을 교정하였으며 검출기의 chamber purging 시간을 12초로 유지하면서 입자 계수



시간은 1분으로 하여 용출된  $^{90}\text{Sr}$  방사능을 구하였다. 한편, 시료 측정 시 계수기 chamber 내 오염 가능성은 고려하여 background를 배서로 측정전에 측정함으로써 검출기내의 오염여부를 확인하여 방사능 측정오차를 최소화하였다.

### 실험 결과

용출핵종의 방사능 측정으로,  $^{137}\text{Cs}$ 과  $^{90}\text{Sr}$ 을 봉산농도 변화에 따른 Figs. 5~10과 Figs. 11~16으로 각각 구분하여 각 시료를 비교하고자 하는 특성별

로 나타내었다. Figs. 5와 6은 중화법에 의해 제조된 고화체의 봉산농도 변화에 따른  $^{137}\text{Cs}$ 의 용출특성을 나타내고 있다. 이것은 봉산 농도가 12w/o 일 때 가장 낮은 용출율을 보여줌으로써 미국 방사성 폐기물 처리전문회사, ATCOR 사의 추천<sup>9)</sup>과 일치한다.

Figs. 7과 8은 sodium silicate 법과 중화법에 의해 제작된 고화체에서  $^{137}\text{Cs}$ 의 용출특성과 지하수와 종류수에서의 용출율 및 수밀성 시멘트의 특성을 보여 주고 있다. 중화법으로 제작된 고화체에서보다 sodium silicate 법으로 제작된 고화체에서의 용출율이 낮다.

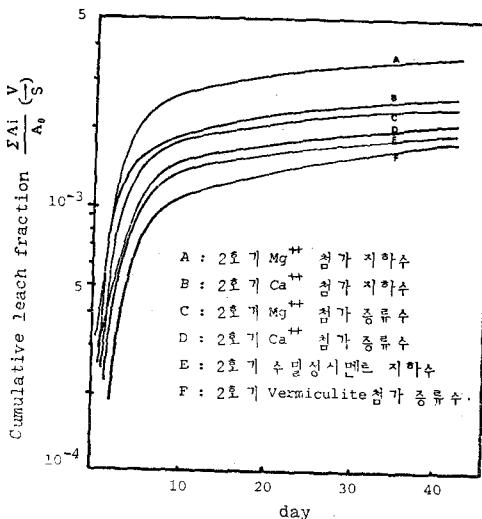


Fig. 9. 각 고화체의  $^{137}\text{Cs}$  용출분율

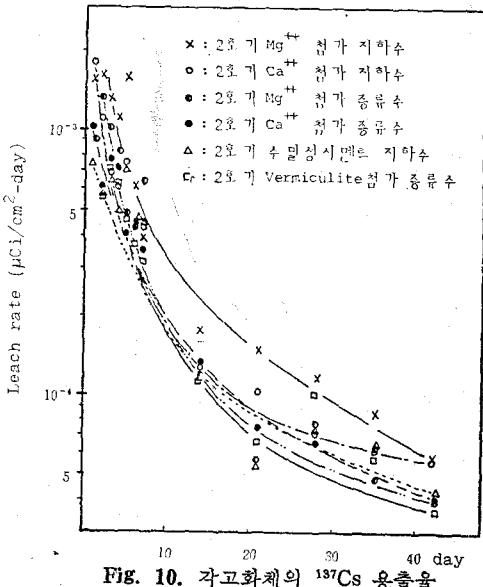


Fig. 10. 각 고화체의  $^{137}\text{Cs}$  용출율

sodium silicate 법에서 첨가된 vermiculite 가  $\text{Cs}^+$ 을 흡착하여 고화체내에 고착시킨다는 것을 보여준다<sup>10</sup>. 또한 용출용액으로 지하수를 사용하는 것은 종류수를 사용하는 것보다 낮은 용출율을 나타낸다. 이것은 핵 종용출 메카니즘이 주로 고화체로부터 용액으로의 확산이라고 볼 때 다른 이온이 존재하는 지하수에서는 종류수에서 보다 더 확산되기 때문이다. 한편, 특기할 만한 사실은 물의 투과성이 매우 낮아서 이온 용출이 적을 것으로 예상되었던 수밀성 시멘트<sup>11</sup>로 제작된 고화체의 용출특성이 큰 효과를 나타내지 못하고 있는데

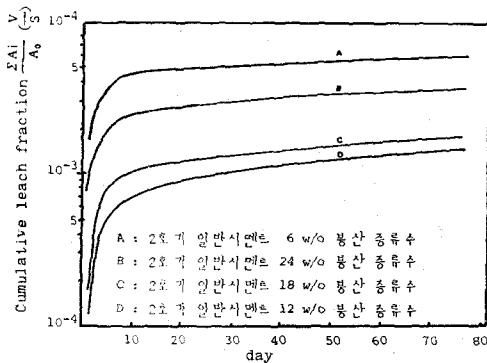


Fig. 11. 봉산농도변화에 따른 2호기 고화체의  $^{90}\text{Sr}$  용출분율

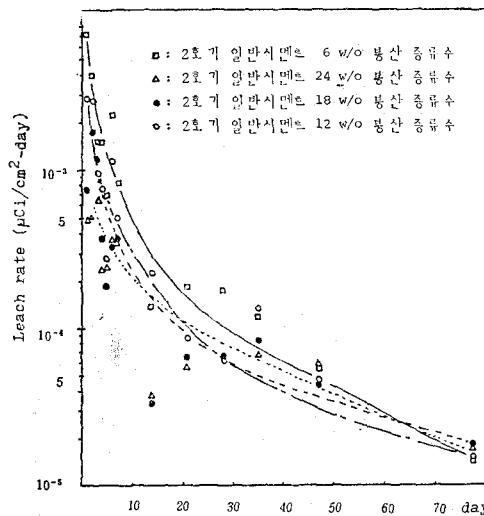
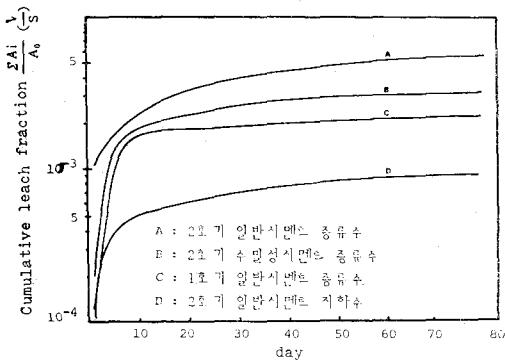
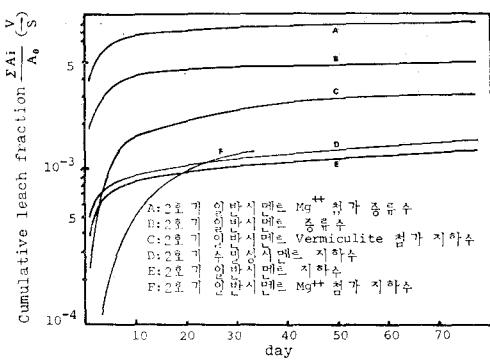
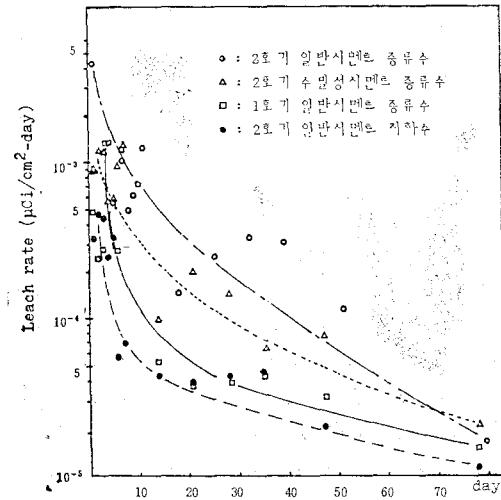
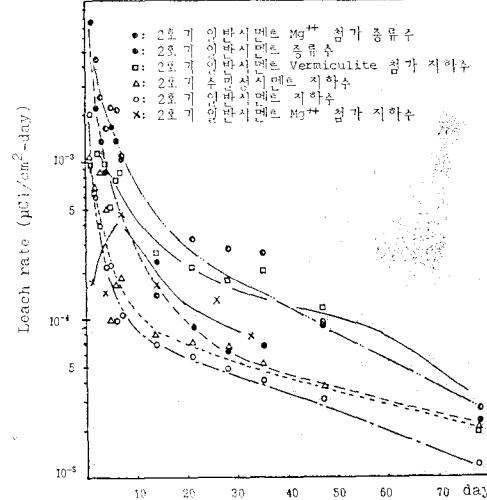


Fig. 12. 봉산농도변화에 따른 2호기 고화체의  $^{90}\text{Sr}$  용출율

그 이유는 시멘트 몰타르가 수화반응을 일으킬 때 발생되는 열이 시간이 경과됨에 따라 없어지면서 생기는 수축현상이 수밀성 시멘트에서는 일반 시멘트에서 보다 장기간에 걸쳐 일어나다는 최근의 보고<sup>12</sup>를 고려할 때 일반적인 고화방법으로써는 고화체내에 미세한 균열을 생기게 하여 수밀성 시멘트의 특성을 잃게 하는 것으로 생각된다.

Figs. 9와 10은 중화법으로 제작된 고화체에서  $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 와  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  및 vermiculite를 첨가한 고화체와 지하수 및 종류수에서의 용출특성을 보여주고 있다.  $\text{Mg}^{++}$  및  $\text{Ca}^{++}$ 를 첨가하였을 때는 지하수를 사용하였을 때가 종류수를 사용할 때보다 용출율이 약간 크게 나타나고 있다. 그리고 vermiculite를 첨가하였을 때는 핵종 용출율이 가장 낮음을 재차 보여준다. 또한

Fig. 13. 각 고화체의  $^{90}\text{Sr}$  용출분율Fig. 15. 각 고화체의  $^{90}\text{Sr}$  용출분율Fig. 14. 각 고화체의  $^{90}\text{Sr}$  용출율Fig. 16. 각 고화체의  $^{90}\text{Sr}$  용출율

이상의 결과로부터  $^{137}\text{Cs}$ 의 용출실험을 시작하여 50일간에 방사능이 초기기의 약  $10^{-3}$ ~ $10^{-4}$ 만큼 용출되었음을 알 수 있다.

Figs. 11과 12는 폐액중 봉산농도의 변화에 따르는  $^{90}\text{Sr}$ 의 용출특성변화를 보여준다. 여기에서도 봉산의 농도가 12 w/o 일때 용출특성이 가장 좋은 것으로 나타난다. 즉, 12 w/o 일때 가장 낮은 용출율을 보여주고 있다.

Figs. 13과 14에서는 sodium silicate법에 의해 제조된 고화체가  $^{90}\text{Sr}$ 의 용출율이 낮음을 보여주며 수밀성 시멘트로 고화시켰을 경우는  $^{137}\text{Cs}$ 의 용출에서와 같이 용출억제특성이 나타나지 않았으며 지하수에서 용출율이 낮음을 보여준다.

Figs. 15와 16에서는 지하수에서  $^{90}\text{Sr}$ 의 용출율이 낮아짐을 보여주고 있으며 vermiculite의 첨가에 의

한 용출율 개선효과는  $^{137}\text{Cs}$ 의 경우와 같이 크지 않음을 보여준다. 이것은  $^{90}\text{Sr}$ 이  $^{137}\text{Cs}$ 에 비해 vermiculite에 흡착되는 효과가 적음을 나타낸다. 또한 경화시키는 시간을 고려할 때 같은 조건하에서 장시간에 걸쳐 경화시킨 고화체의 용출특성이 단기간 경화시킨 것보다 더 좋음을 보여준다.

## 결 론

현재 상업가동중인 고리 1,2호기 원자력 발전소의 중·저준위 방사성 폐기물 처리방법에 의한 시멘트 고화체에서 핵증용출특성을 각 시료의 특성에 따라 분류하여 본 결과는 이미 연구 발표된 자료들을 재차 확인하고 있다. 그러나, 시멘트 종류를 변화시켰을 경우 즉, 일반 portland 시멘트 대신 수밀성 시멘트를 고화

불질로 사용하였을 때 기대했던 폐기물 고화체에서 핵종의 용출특성이 이루어지지 않는 것과 고리 5호기 방식에서  $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  와  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 를 첨가하여 제작한 고화체의 경우에  $^{137}\text{Cs}$  이 중류수에서 보다 지하수에서 더 높은 용출율을 나타내고 있음은 정확한 특성을 구명하기 위하여 추가연구가 필요하다. 또한 leachate를 계속 흐르게 하는 동적인 실험방법 및 실제 시멘트 폐기물 고화체에서의 diffusion 등을 연구하여 실험시편과의 상호관계를 정립하여 폐기물 처리·처분장의 주변 조건등과 연관하여 용출특성을 연구하여야 할 것이다.

결론적으로 가압경수로형 원자력 발전소의 1차 냉각수 계통에서 발생되는 방사성 액체 폐기물 시멘트 고화체 중에 존재하는 대표적으로 선택된  $^{137}\text{Cs}$  및  $^{90}\text{Sr}$  핵종의 용출특성을 연구하여 가장 기본적인 자료를 제공함으로써 지중처분장 선정 및 안정성 평가에 기여하고 나아가 더욱 발전될 연구방향의 제시 및 관련 연구에서의 기본적인 source term이 될 것이다.

### 참 고 문 헌

- 1) 임용규, “방사성 폐기물 관리와 국가정책”, 국내 방사능 폐기물 관리 세미나, KAERI/TR6-8/84, p. 7-32(1984).
- 2) IAEA, “Conditioning of Low and Intermediate-level Radioactive Wastes”, IAEA-TR-22(1983).
- 3) A. Donato, “Incorporation of Radioactive Waste in Polymer-impregnated Cement”, Management of Radioactive Waste from the Nuclear Fuel Cycle, (Proc. Symp. Vienna), IAEA, Vienna (1976).
- 4) D.M. Roy and G.R. Gouda, “High-level Radioactive Waste Incorporation into Special Cement”, Nuclear Technology, Vol.40, p. 214-219 (1978).
- 5) M. Brownstein and R.G. Levesque, “Experience with Cement Usage as The Binding Agent for Radioactive Waste”, ASME, 78-N E-15 (1978).
- 6) 박태순, 전재석, 박궁식, 「감마선 Spectrometry」에 의한 방사능 측정, KSRI-MO-14(1981).
- 7) Hiroshi Hatta, et al. “Experimental Study on The Leaching of Radioactive Materials from Radioactive Wastes Solidified in Cement into Sea Water”, ORNL-tr-4226(1975).
- 8) E.D. Hespe, “Leach Testing of Immobilized Radioactive Waste Solid”, A Proposals for A Standard Method. Atomic Agency Review, No. 9, p. 195-207(1971).
- 9) 고리 원자력 발전소, 화학과, 액체폐기물 시멘트 고화체 배합률 조정(1981).
- 10) S.H. Lee, “Study on The Sorption and Fixation of Cesium by Vermiculite”, J. Korean Nuclear Society, Vol. 6, p. 97-111(1974).
- 11) 홍원표, 「수밀성 포오틀랜드 시멘트 제조방법, 대한민국 특허청 859호, 특허번호 83-2008(1983).
- 12) 조현영, Asphalt 와 Carbon Black 으로 처리된 수밀성 포오틀랜드 및 콘크리트의 내구성, 석사논문 충남대학교(1985).

**Study on Leaching Characteristics of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$   
from Cement-Solidified Radwastes**

**Sun-Tae Hwang, Kyung-Ju Lee, Kil-Oung Choi**

*Korea Standards Research Institute*

**Hun-Whee Park, Hwan-Young Kim**

*Korea Advanced Energy Research Institute*

=Abstract=

For the safety assessment of radwaste treatment and disposal, the leaching characteristics of  $\text{Cs}^+$  and  $\text{Sr}^{++}$  from the cement-solidified radwastes was investigated by means of the survey and analysis of the activity leach rate and cumulative leach fraction of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  leaching from solidified radwastes.

The cylindrical cement-solidified samples were made by the sodium silicate method and neutralization method changing the mole density of simulated liquid radwaste, type of cement, adding material and concentration of boric acid. The leaching study was carried out by the method using simulated PWR concentrated liquid radwaste solidified in cement that had been processed following the recommendations of IAEA.

All the experimental results are in well accordance with the research data reported previously, but the watertight cement-solidified radwastes show rather high leach rate of radioactivity. It is learned, therefore, that the watertight cement is not adequate as the material for the solidified radwastes.