



저작자표시-비영리-변경금지 2.0 대한민국

이용자는 아래의 조건을 따르는 경우에 한하여 자유롭게

- 이 저작물을 복제, 배포, 전송, 전시, 공연 및 방송할 수 있습니다.

다음과 같은 조건을 따라야 합니다:



저작자표시. 귀하는 원저작자를 표시하여야 합니다.



비영리. 귀하는 이 저작물을 영리 목적으로 이용할 수 없습니다.



변경금지. 귀하는 이 저작물을 개작, 변형 또는 가공할 수 없습니다.

- 귀하는, 이 저작물의 재이용이나 배포의 경우, 이 저작물에 적용된 이용허락조건을 명확하게 나타내어야 합니다.
- 저작권자로부터 별도의 허가를 받으면 이러한 조건들은 적용되지 않습니다.

저작권법에 따른 이용자의 권리는 위의 내용에 의하여 영향을 받지 않습니다.

이것은 [이용허락규약\(Legal Code\)](#)을 이해하기 쉽게 요약한 것입니다.

[Disclaimer](#)

2020년 2월
박사학위 논문

Pellet화를 적용한 처분부적합
방사성폐기물 고화공정 최적화 연구

조선대학교 대학원

원자력공학과

정 민 영

Pellet화를 적용한 처분부적합
방사성폐기물 고화공정 최적화 연구

A Study on the Optimization of Solidification Process for
Radioactive Waste Not Suitable for Disposal by
Pelletization

2020년 2월 25일

조선대학교 대학원

원자력공학과

정 민 영

Pellet화를 적용한 처분부적합 방사성폐기물 고화공정 최적화 연구

지도교수 송 종 순

이 논문을 공학 박사학위 신청 논문으로 제출함

2019년 10월

조선대학교 대학원

원자력공학과

정 민 영

정민영의 박사학위논문을 인준함

위원장	조선대학교	교수 정운관 (인)
위원	조선대학교	교수 이경진 (인)
위원	한국원자력연구원	박사 김기홍 (인)
위원	(주) 선광티앤에스	박사 최영구 (인)
위원	조선대학교	교수 송종순 (인)

2019년 12월

조선대학교 대학원

목 차

ABSTRACT	i
제1장 서론	1
제2장 처분부적합 방사성폐기물의 고화처리 및 처분	5
제1절 개 요	5
1. 처분부적합 방사성폐기물의 정의	5
2. 처분부적합 방사성 폐기물의 발생원	6
3. 처분부적합 방사성 폐기물의 발생량	9
제2절 중·저준위 방사성폐기물 처분 인수 기준	10
1. 국내의 처분 인수 기준	12
2. 방사성폐기물의 고화	18
제3장 처분부적합 방사성폐기물의 펠렛 성형	22
제1절 분말의 펠렛 성형에 대한 이론적 배경	22
1. 분말의 펠렛 성형기술 분석	22
2. Johanson의 롤 컴팩션 모델	23
3. 펠렛 성형을 위한 분말의 입도 분류	32
제2절 모의 폐기물 시료의 제조 및 물리화학적 특성	33
1. 모의 폐기물 시료 제조	34
제3절 모의 폐기물 시료의 펠렛 성형실험	44
1. 분말의 펠렛성형 실험장치의 구성	44
2. 모의 폐기물 시료의 압축성 평가실험	49
3. 모의 폐기물 시료의 성형펠렛 평가실험	50
제4절 성형 펠렛의 결과 및 고찰	51
1. 모의 폐기물 시료의 압축성 실험결과 및 고찰	51
2. 펠렛의 성형을 위한 실험장치의 운전변수 평가	54

3. 모의 폐기물 시료의 성형 펠릿에 대한 평가	59
제4장 처분부적합 방사성폐기물의 폴리머 고화	60
제1절 처분부적합 방사성폐기물의 고화	60
1. 방사성폐기물 고화기술의 현황	60
2. 기존 고화공정의 문제점	61
3. 기존 고화공정의 문제점 해결을 위한 접근방안	61
제2절 분말 성형 펠릿의 폴리머 고화실험	62
1. 개요	62
2. 성형 펠릿의 폴리머 고화 실험	64
제3절 펠릿 함입 폴리머 고화체의 특성 평가실험	72
1. 압축강도 시험	73
2. 열 순환 시험	75
3. 침수 시험	76
4. 방사선 조사 시험	79
5. 침출 시험	80
제4절 펠릿 함입 폴리머 고화체의 특성 평가 결과 및 고찰	83
1. 압축강도 특성	83
2. 열 순환 특성	88
3. 침수 특성	92
4. 방사선조사 특성	94
5. 침출 특성	97
제5절 처분부적합 방사성폐기물의 감용 효과 분석	116
1. 펠릿화에 의한 분말의 감용비 평가	116
2. 펠릿 함입 폴리머 고화체의 감용비 평가	118
제5장 결론	120

참고문헌 123

표 목차

Table 1. 각 원전별, 연도별 중·저준위 방사성폐기물 발생 현황	9
Table 2. 폐기물 저장 현황 (200L 드럼, 2019, 3분기 기준)	10
Table 3. IAEA 폐기물 특성분류	12
Table 4. 국내 폐기물인수기준(WAC) 분류 조건	12
Table 5. 폐기물 고화체 시험 기준	15
Table 6. 핵종별 처분 농도 제한치	16
Table 7. 롤 컴팩션의 주요 인자	25
Table 8. 토양 입도 분류 (mm)	32
Table 9. 슬러지별 무기물 화학적 조성(wt.%)	34
Table 10. 조건별 시료 선정 및 종류	35
Table 11. 국내(경주) 벤토나이트 화학조성	36
Table 12. 토양의 무기물 화학적 조성(wt.%)	37
Table 13. 국내 시판중인 포틀랜드 시멘트의 조성 (wt.%)	39
Table 14. 농축 폐액의 화학적 조성 (wt.%)	40
Table 15. Sump Sludge의 물리화학적 특성	42
Table 16. Sump Sludge의 화학적 조성	42
Table 17. 부식성 슬러지의 화학적 조성	43
Table 18. Process Parameters and Conditions in Roller Compaction	48
Table 19. 시료 종류별 사전 압축성 평가 결과	53
Table 20. 운전변수에 따른 펠렛 압축강도	59
Table 21. Advantages of Polymer Solidification	63
Table 22. Polymer Solidification Technologies of DTS	64
Table 23. Viscosity According to the addition of LGE (30 RPM, 단위:cps)	66
Table 24. Viscosity According to the addition of LGE (100 RPM, 단위:cps)	66
Table 25. 최적 폴리머 선정을 위한 주제와 경화제의 종류별 혼합비	68
Table 26. 처분안전성을 위한 폐기물 고화체 판정 기준	73
Table 27. 열 순환시험 전 폴리머 고화체 시편 Data	76

Table 28. 침수시험 전 폴리머 고화체 시편 Data	78
Table 29. 폴리머 고화체 시험 시편의 압축강도	84
Table 30. 열 순환시험 전후의 각 시험 시편별 제원에 따른 부피 및 무게 변화율 89	
Table 31. 열 순환시험 후 압축강도	90
Table 32. 침수시험 전후의 각 시험 시편별 제원에 따른 부피 및 무게 변화율	93
Table 33. 침수시험 후 압축강도	94
Table 34. 방사선조사를 위한 조사 조건	95
Table 35. 방사선조사시험 전후의 각 시험 시편별 제원에 따른 부피 및 무게 변 화율	96
Table 36. 방사선조사시험 후 압축강도	97
Table 37. 침출 시험을 위한 고화체 시험 시편의 제원	97
Table 38. 침출 시험 후 교체된 침출액의 pH 측정결과	98
Table 39. 침출 시험 후의 교체된 침출액의 전도도(Conductivity) 측정 결과 ·	100
Table 40. 장치별 화학종 측정 조건	101
Table 41. 침출 시험 시편별 화학종의 초기 농도	102
Table 42. 침출수 교체 시 침출액의 화학종 농도(침출 시험 시편 L1)	102
Table 43. 침출수 교체 시 침출액의 화학종 농도(침출 시험 시편 L2)	103
Table 44. 침출수 교체 시 침출액의 화학종 농도(침출 시험 시편 L3)	103
Table 45. 침출수 교체 시 침출액의 화학종 농도(침출 시험 시편 L4)	104
Table 46. 침출수 교체 시 침출액의 화학종 농도(침출 시험 시편 L5)	104
Table 47. 침출수 교체 시 침출액의 화학종 농도(침출 시험 시편 L6)	105
Table 48. 침출 시험 시편의 화학종별 평균 침출 지수	106
Table 49. 화학종의 침출 지수 계산(침출 시험 시편 L1)	107
Table 50. 화학종의 침출 지수 계산(침출 시험 시편 L2)	108
Table 51. 화학종의 침출 지수 계산(침출 시험 시편 L3)	109
Table 52. 화학종의 침출 지수 계산(침출 시험 시편 L4)	110
Table 53. 화학종의 침출 지수 계산(침출 시험 시편 L5)	111
Table 54. 화학종의 침출 지수 계산(침출 시험 시편 L6)	112

Table 55. 토양 슬러지 펠렛의 감용비	116
Table 56. 콘크리트 슬러지 펠렛의 감용비	117
Table 57. 선프(Sump) 슬러지 펠렛의 감용비	117
Table 58. 바닥 슬러지 펠렛의 감용비	118
Table 59. 펠렛 성형의 감용비 평가 (토양)	119
Table 60. 펠렛 성형의 감용비 평가 (콘크리트)	119
Table 61. 펠렛 성형의 감용비 평가 (선프(Sump))	119
Table 62. 펠렛 성형의 감용비 평가 (바닥)	119
Table 63. 펠렛성형의 감용비 평가 (부식)	119

그림 목차

FFig. 1. 가압경수로에서의 방사성폐기물 발생원	7
Fig. 2. 방사성폐기물 분류체계의 변화 및 처분방법	11
Fig. 3. 과립화(Granulation) 공정의 개념도	23
Fig. 4. 롤 컴팩션(Roll compaction) 개념도	25
Fig. 5. 잘림 영역(Nip Angle)의 정의	27
Fig. 6. Effective angle of internal friction and angle of wall friction	28
Fig. 7. 제조된 모의 시료	35
Fig. 8. 벤토나이트(일성케미컬) 입도 분포도	37
Fig. 9. 토양의 입도 분포도	38
Fig. 10. 토양의 SEM 사진	38
Fig. 11. 콘크리트의 입도 분포도	39
Fig. 12. 콘크리트의 SEM 사진	40
Fig. 13. 농축 폐액 슬러지의 입도 분포도	41
Fig. 14. 농축 폐액 슬러지의 SEM 사진	41
Fig. 15. Sump 슬러지의 입도 분포도	42
Fig. 16. Sump 슬러지의 SEM 사진	43
Fig. 17. 부식 슬러지의 입도 분포도	44
Fig. 18. 부식 슬러지의 SEM 사진	44
Fig. 19. 펠렛성형장치의 개념도	46
Fig. 20. 펠렛성형장치의 롤 포켓 설계 (사각형) 및 사각형 펠렛	46
Fig. 21. 펠렛성형장치 (측면)	47
Fig. 22. 펠렛성형장치 (정면)	47
Fig. 23. 펠렛성형장치의 롤 포켓 (측면, 정면)	48
Fig. 24. Roll gap 측정을 위한 장치	49
Fig. 25. Experiment by using an uniaxial die compaction	49
Fig. 26. Determination of compressibility	50
Fig. 27. 성형 펠렛 평가를 위한 지그와 강도 측정용 시편	51

Fig. 28. 일축 압축을 위한 시험장치 및 압축 다이	52
Fig. 29. 일축 압축을 이용한 시료의 압축 평가	52
Fig. 30. 슬러지 종류별 압축성	53
Fig. 31. 성형 압축력에 따른 성형된 펠렛의 질량 변화	54
Fig. 32. 롤 회전속도에 따른 성형된 펠렛의 질량 변화	55
Fig. 33. 분말 주입속도에 따른 성형 펠렛의 질량 변화	56
Fig. 34. 롤 간격의 변화에 따른 펠렛의 성형 조건	57
Fig. 35. 분말 공급 속도 변화에 따른 두 롤 간의 간격	58
Fig. 36. 롤 회전속도 변화에 따른 두 롤 간의 간격	58
Fig. 37. 모의 폐기물로부터 성형된 펠렛	59
Fig. 38. 30 RPM에서의 희석제(LGE) 첨가량에 따른 폴리머 주제의 점도	67
Fig. 39. 30 RPM에서의 희석제(LGE) 첨가량에 따른 폴리머 경화제의 점도	67
Fig. 40. 사전 특성평가에 사용된 고화체 시편 (007, 008, 009, 010)	69
Fig. 41. 성형 펠렛의 폴리머 고화 개념도	70
Fig. 42. 펠렛의 폴리머 고화체의 발열온도 측정 (60 °C 경화)	71
Fig. 43. 펠렛의 폴리머 고화체의 발열온도 측정 (상온경화)	71
Fig. 44. 펠렛의 폴리머 고화체의 경화시 발열온도 측정	72
Fig. 45. 특성평가에 사용되어진 고화체 시험 시편	73
Fig. 46. 열 순환 시험의 상한 및 하한 온도(1 주기 = 24 시간)	76
Fig. 47. 침수용기의 제원(上) 및 PTFE 침수용기(下)	77
Fig. 48. 침수 시험 시편의 침수 시험 수행과정	78
Fig. 49. 펠렛 함입 폴리머 고화체 방사선 조사 시험	80
Fig. 50. 침출 용기의 설계 및 PTFE 침출 용기 재원	81
Fig. 51. 고화체 침출 시험 개념도	81
Fig. 52. 침출 시험 시편의 침출 용기 내 장착과 침출 시험 수행	82
Fig. 53. 압축강도 시험 전·후 시편 (상; 시험 전, 하; 시험 후)	83
Fig. 54. 폴리머 고화체 시편 압축강도 결과	85
Fig. 55. 007-03 시편의 Stress - Strain Curve	85
Fig. 56. 007-08 시편의 Stress - Strain Curve	86

Fig. 57. 008-01 시편의 Stress - Strain Curve	86
Fig. 58. 009-03 시편의 Stress - Strain Curve	87
Fig. 59. 010-03 시편의 Stress - Strain Curve	87
Fig. 60. 010-06 시편의 Stress - Strain Curve	88
Fig. 61. 010-09 시편의 Stress - Strain Curve	88
Fig. 62. 열 순환시험 후 시편 (上) 및 열 순환시험 후 압축강도 측정 시편 (下)	89
Fig. 63. 폴리머 고화체의 열 순환시험 후 압축강도 결과	90
Fig. 64. 007-01 시편의 Stress - Strain Curve	91
Fig. 65. 008-03 시편의 Stress - Strain Curve	91
Fig. 66. 009-01 시편의 Stress - Strain Curve	92
Fig. 67. 010-01 시편의 Stress - Strain Curve	92
Fig. 68. 침수시험 후 시편(上) 및 침수시험 후 압축강도 측정 시편(下)	93
Fig. 69. 폴리머 고화체의 열 순환시험 후 압축강도 결과	94
Fig. 70. 방사선 조사시험 후 시편 (上) 및 방사선 조사시험 후 압축강도 측정 시 편 (下)	96
Fig. 71. 침출 시험 종료 후의 고화체 시편 모습	98
Fig. 72. 침출액 교체에 따른 침출액의 pH 비교	99
Fig. 73. 침출액 교체에 따른 침출액의 전도도(Conductivity) 비교	100
Fig. 74. 화학종 분석을 위한 ICP-MS(좌) 와 ICP-AES(우)	101
Fig. 75. ANS 16.1 침출 시험으로 산출된 침출 지수	113
Fig. 76. ANS 16.1 침출 시험으로 산출된 침출 지수	113
Fig. 77. ANS 16.1 침출 시험으로 산출된 침출 지수	114
Fig. 78. ANS 16.1 침출 시험으로 산출된 침출 지수	114
Fig. 79. ANS 16.1 침출 시험으로 산출된 침출 지수 (침출 시험 시편 L5)	115
Fig. 80. ANS 16.1 침출 시험으로 산출된 침출 지수 (침출 시험 시편 L6)	115

ABSTRACT

A Study on the Optimization of Solidification Process for Radioactive Waste Not Suitable for Disposal by Pelletization

Jung Minyoung

Advisor : Prof. Jongsoon Song, Ph.D.

Department of Nuclear Engineering

Graduate School of Chosun University

The disposal-incongruent radioactive wastes generated from the operation or decommissioning of NPPs must be treated, solidified and packaged prior to disposal. These wastes are typically exemplified by particulates of radioactive wastes with dispersion characteristics. These wastes include the dried powders of concentrated, slurry, sludge, various powdered wastes generated in the decommissioning process (crushed concrete, decontamination sludge, etc.), and fine radioactive soil which is hard to decontaminate. As these particulate wastes must be packaged so that they become non-dispersive, they are solidified with solidification agents such as cement, asphalt and polymer. If they are treated using the existing solidification methods, however, the volume of the final wastes will increase. This drawback may increase the disposal cost and not meet the acceptability of disposal sites. Accordingly, for solving these problems, this study investigates the pelletization of particulate radioactive wastes and their solidification with polymer in order to reduce final waste volume.

제1장 서론

방사성폐기물은 크게 원자력발전소와 방사성동위원소를 이용하는 병원, 연구기관 및 산업체 등의 다양한 곳에서 발생하며, 발생원에 따라서 방사성폐기물의 종류와 형태는 매우 다르다. 방사성폐기물(Radioactive Waste)은 “원자력안전법” 제2조 제18호에서 “방사성물질 또는 그에 따라 오염된 물질로서 폐기의 대상이 되는 물질(사용후핵연료를 포함한다)”로 정의하고 있다[1]. 국내에서는 방사성폐기물로부터 2 kW/m²의 열 발생을, 반감기 20년 이상의 알파선을 방출하는 핵종의 방사능 농도 4,000 Bq/g의 함유 기준으로 고준위 방사성폐기물과 중·저준위 방사성폐기물로 분류하고 있으며, 중·저준위 방사성폐기물은 세부적으로 방사능 농도에 따라 중준위, 저준위, 극 저준위 및 자체 처분 방사성폐기물로 세분화하고 있다.

방사성폐기물의 발생 종류 및 형태는 원전의 운영과 해체 그리고 동위원소의 사용 목적과 방법에 따라 매우 다양하다. 원전 운영 폐기물들은 핵연료의 붕괴로 인한 핵분열 물질과 중성자에 의해 방사화된 부식 생성물들이 발생하게 되는데, 이들 물질을 제거하거나 제염하는 과정에서 기체, 액체 및 고체 형태로 방사성폐기물로 발생하게 된다. 기체 폐기물은 주로 반감기기가 매우 작아서 완전히 감쇄할 수 있도록 저장하여 처리하며, 고체폐기물은 표면 연마하여 오염 부분을 제거하거나 부피 감용화를 위하여 압축 처리하게 된다. 그리고 액체폐기물 내의 핵분열성 물질과 부식 생성물을 제거(처리)하는 과정에서 다양한 종류의 폐기물이 발생하는데, 즉 냉각수 내의 핵종을 제거하는 과정에서는 폐 이온교환수지, 냉각수 내의 부식생성물을 제거하는 과정에서는 폐 필터, 냉각수 내의 붕소 화합물을 제거하는 과정에서는 농축 폐액, 그리고 1차 계통에서 누설된 액체폐기물로부터는 슬러리나 슬러지 폐기물, 1차 계통의 루프 제염 과정에서는 부식물과 유기물이 혼합된 제염폐기물 등 매우 다양한 종류 및 형태의 폐기물들이 발생하며 일반적으로 이들은 고화 처리하게 된다. 한편, 원전 해체과정에서는 발생하는 방사성폐기물은 원전 운영폐기물과 매우 유사하거나 거의 동일하지만 실제로는 원전 운영폐기물보다 더 다양한 폐기물들이 발생하는데, 여기서 주목되는 것은 오염 토양과 콘크리트 폐기물이 발생한다는 것이다. 밀봉되었거나 개봉된 상태로 방사성 동위원소를 이용하는 산업체에서는 발생량은 적으나 매우 다양한 방사성폐기물을 발생하는 것으로 보인다. 앞에서 열거한 모든 방사성폐기물은 발생된 자체 상태로는 관리하기가

매우 어려우며 방사선 피폭 우려가 매우 높다. 더욱이 이들 폐기물 자체를 처분하는 것은 더욱 곤란하기 때문에 처분하기에 적합한 상태로 처리하여야 하며 이러한 폐기물들은 처분 부적합 폐기물들로 분류된다.

원전 운영폐기물과 원전 해체폐기물의 고화처리 방법은 대부분 동일하지만 원전 해체폐기물 중에서 오염된 토양이나 콘크리트 폐기물은 상대적으로 상당량이 발생하기 때문에 처분량을 줄일 목적으로 자체 처분이 되도록 핵종 제거 연구가 대세를 이루고 있다. 하지만 자체 처분이 불가능한 경우에 그에 대한 처리 방법 및 기술은 전무한 실정이다. 시멘트, 아스팔트 및 폴리머 등의 고화 매질로 방사성폐기물을 고화하는 경우에는 방사성폐기물의 감용화 측면이 전혀 고려되지 못한 상태로 단순히 방사성폐기물을 고화하는 측면이 크다. 실제로 시멘트, 아스팔트 및 폴리머 등으로 방사성폐기물을 고화할 때에는 최종적으로 생산되는 방사성 고화체의 부피는 고화하기 전 초기의 방사성폐기물 부피보다 최소 2 배 이상의 부피로 증가하게 되며 이러한 최종 방사성폐기물 고화체 부피의 증가는 처분 비용의 증가와 처분장의 조기 포화를 발생시키게 된다.

국내 원전의 경우에 원전 운영폐기물(농축 폐액과 폐수지)에 대하여 시멘트 고화 공정(Atcor Process, Hittmann Process)을 적용하여 운영하고 있었지만, 초기의 방사성폐기물 부피보다 최종 방사성폐기물 고화체의 부피 증가로 인하여 시멘트 고화 공정을 파라핀 고화 공정으로 대체하게 되었다. 이 파라핀 고화 공정은 CWDS(Concentrate Waste Drying system) 시스템을 이용하여 농축 폐액을 완전히 건조하여 건조한 분말로 전환하고, 이어서 파라핀(paraffin)과 혼합하여 파라핀 고화체를 제조하는 기술이다. 농축 폐액을 완전히 건조하여 건조 분말로 전환시키기 때문에 방사성폐기물의 감용 측면에서는 매우 획기적인 일이었지만 파라핀 고화체는 기계적 강도가 매우 낮아 처분 인수기준을 만족시키지 못하였으며 핵종 누출억제 기능을 전혀 보유하고 있지 못하여 파라핀 고화 공정은 활용할 수 없게 되었다. 이어서 폴리머(Epoxy Resin) 고화 공정을 활용하게 되었는데, 이 기술은 상기의 문제점들을 보완할 목적으로 도입되었다. 폴리머 고화 공정은 농축 폐액을 CTS(Concentrates Treatment System)로 완전히 건조시키면서 농축 폐액 분말을 일정한 크기의 과립물(Granules)로 만들고, 이 과립물들을 드럼 내에 충전 시켜 과립물과 과립물 사이의 공간을 액상의 에폭시 수지로 침투시켜 상온에서 경화시키는 기술이다. 기술적인 측면에서 방사성폐기물의 부피 감용화와 방사성 고화체의 건전성 확보 측면에서 매우 타당성을 갖는 기술이라 평가되었지만, CTS에서 농축 폐액 분말로부터 과립물 형성이 수월하지 못하였고, 과립물을 형성하여도

과립물의 입도분포가 매우 넓어서(수 μm ~ 수십 mm) 이들을 드럼 내에 충전하였을 경우 에폭시 수지가 미세 분말로 침투되지 못하여 불건전한 고화체가 형성되는 문제점을 갖고 있었다.

방사성폐기물을 고화하여 제조된 방사성 고화체는 모든 방사성폐기물을 중앙 집중 방식으로 안전하게 관리하는 처분장의 인수기준을 충족하여야만 처분장에 처분할 수가 있다. 이러한 방사성폐기물의 처분기준에는 국가에서 기본적으로 요구하는 사항들과 처분장의 환경과 설계조건을 고려한 요구사항들이 있다. 방사성폐기물을 처분장에 처분을 의뢰하는 방사성폐기물 발생자 입장에서는 이 기준을 방사성폐기물 인도 규정(원자력안전위원회(이하 원안위) 고시)이라 하며, 방사성폐기물의 처분을 의뢰받은 처분장 입장에서는 방사성폐기물 인수기준(산업자원부 고시)이라 할 수가 있다. 또한 국가 규정 외에 처분장 입장에서 처분장의 설계, 건설 및 운영을 고려하여 처분장의 성능 목표와 환경조건 등을 고려하여 처분장 자체적인 방사성폐기물 인수기준이 별도로 있다. 방사성폐기물 인수 또는 인도 규정은 처분장 내에서 300년의 제도적 관리기간 동안 처분장의 환경조건 하에서 방사성 고화체의 구조적 건전성 유지, 방사성 고화체로부터의 핵종 누출 방지, 그리고 처분장의 성능 목표를 달성하기 위한 요구사항들로 구성되어 있으며, 보다 세부적으로는 일반요건, 고품화 요건, 방사선적 특성, 물리적 특성 및 화학적 특성으로 구성되어 있다.

본 연구에서는, 1) 시멘트 고화의 대부분의 고화 방식에서 최종 방사성폐기물 고화체의 부피가 초기의 방사성폐기물의 부피보다 증가하는 문제점, 2) 파라핀 고화의 감용비가 높지만 농축 폐액 건조 분말 함유 파라핀 고화체의 구조적 건전성의 불량 및 핵종 누출의 문제점, 3) CTS에서 제조된 과립물의 입도분포가 너무 넓어서 폴리머 고화가 용이하지 못한 문제점 등을 해결하면서, 4) 대량 발생이 가능한 방사성폐기물의 감용화 및 안정화를 위한 안전관리 측면과 5) 처분장의 인수조건 등을 고려하여 농축 폐액과 슬러지 폐기물의 건조 분말, 해체과정에서 대량으로 발생하는 입자상의 오염 토양과 폐콘크리트 분말을 연구대상 폐기물로 선정하였다.

앞서 선정한 방사성폐기물들은 입자 상태 이면서 유동성을 갖고 있기 때문에 방사성 폐기물 인수조건에서 요구하는 비분산성이 되도록 안정화를 하거나 또는 구조적 건전성을 확보하면서 핵종이 누출되지 않도록 고화 처리하여야 한다. 특히 이들 입자 상태의 폐기물들을 단순히 혼합방식에 의해 고화 처리하는 경우는 시멘트 고화의 경우처럼

최종 방사성 고화체의 부피는 초기의 방사성폐기물 부피보다 크게 되므로 이를 방지하고 고건전성의 고화체를 제조할 필요가 있다. 따라서 본 논문에서는 파라핀 고화의 장점과 폴리머 고화의 장점을 최대한 활용할 수 있는 방안을 고려하게 되었고, 이를 실현할 수 있는 다양한 기술과 조건들을 사전 정밀히 조사하고, 분석하고 평가하였다.

일차적으로 분말의 안정화와 감용화 측면에서 입자상의 폐기물 분말을 일정한 단일 크기의 펠렛으로 기계적으로 압축 성형시키고, 이차적으로 펠렛을 드럼 내에 충전 할 때 충전율이 극대화되도록 하여 이들 두 단계에서 폐기물 부피의 감용화가 실현되는 방법과 관련 기술을 고려하게 되었다. 또한 동일한 크기의 펠렛과 펠렛 사이의 공간을 침투하기 용이한 액상의 고화 매질, 펠렛과 펠렛 사이에서 펠렛들을 강력히 접착시킬 수 있으면서 핵종 누출을 억제할 수 있는 소수성의 폴리머를 고화 매질로 선정하였다.

이에 따라서 본 연구에서는 대상폐기물로 선정된 방사성폐기물의 물리 화학적 무기 조성을 문헌상에서 조사된 조건으로 각 모의 폐기물을 제조하였다. 제조된 입자 상태의 모의 폐기물의 물리적 특성을 고려하여 압축성을 평가하였다. 이 결과를 토대로 입자상의 모의 폐기물 분말을 압축하여 펠렛으로 성형시킬 수 있는 기술로 타블렛(Tableting) 대신 롤 브리켓(Roll Briquetting) 기술을 선정하였다. 이유는 타블렛(Tableting) 기술은 한수원 중앙연구원에서 활용한 사례가 있었지만, 단위 시간당 처리량이 적어 대량으로 일시에 발생하는 원전 해체폐기물을 처리할 수가 없고, 부속장치를 포함하여 거대한 장치가 요구되며, 미분말의 방사성폐기물 분산으로 인한 주변 지역의 오염 가능성이 높았기 때문이다. 이어서 실험실 규모의 롤 브리켓(Roll Briquetting) 장치를 이용하여 벤토나이트를 대상으로 운전 변수를 평가하고, 성형된 펠렛의 드럼 내 충전율을 극대화할 수 있는 롤 포켓을 제작하여 대상 폐기물로 선정된 모의 폐기물들의 펠렛을 성형제를 사용하지 않으면서 성형하도록 하였다. 또한 펠렛을 에폭시 폴리머로 고화할 때의 최적 고화 및 경화 조건을 도출토록 하였으며, 에폭시 폴리머의 주제와 경화제의 최적 혼합비율도 도출하도록 하였다. 이를 통하여 펠렛의 고화공정을 최적화하도록 하였으며 처분 부적합한 폐기물로 제조된 펠렛의 폴리머 고화체에 대한 처분 적합성을 종합적으로 평가하도록 하였으며, 분말과 고화체 기준으로 각각 감용비를 종합 평가하도록 하였다.

제2장 처분부적합 방사성폐기물의 고화 처리 및 처분

제1절 개요

1. 처분부적합 방사성폐기물의 정의

처분부적합 방사성폐기물은 넓은 의미에서 처분장의 인수기준에 규정되어 있지 않거나, 처분장 인수기준을 충족시키지 못하거나, 또는 인수검사 과정에서 불만족한 판정을 받은 방사성폐기물들로 정의할 수 있다고 판단된다. 좁은 의미로는 발생한 자체로는 처분이 불가능하면서 또한 처리기술의 미확보로 인하여 처리되지 못한 상태의 방사성폐기물로 정의할 수가 있다. 대표적인 방사성폐기물로 혼합폐기물(Mixed waste, 방사성을 가지면서 유해성인 폐기물), 유동성을 갖는 입자상 방사성폐기물들을 예로 들 수가 있다. 유동성인 입자상 방사성폐기물은 벌크 밀도가 매우 낮아서(표면적이 매우 넓음) 기존의 고화 기술을 적용하여 고화 처리할 경우에는 최종 생산되는 고화체는 그 부피가 상당히 증가하는 문제를 갖고 있다. 한편 혼합폐기물에 대하여서는 처분장 설계와 방사성폐기물 인수기준에 반영되어 있지 못한 상태이다.

본 연구에서 처분부적합 방사성폐기물로 간주하고 있는 대상들은 원전 운영폐기물중의 농축 폐액의 건조 분말과 슬러지 및 슬러지 내의 입자들, 그리고 원전 해체폐기물중의 미세 입자들인 오염 토양 그리고 폐콘크리트 파쇄물 등이다. 이들 폐기물은 국내 ‘방사성폐기물 분류 및 자체 처분 기준에 관한 규정(원안위 제2019-60호)’을 고려하여 방사능 준위가 저준위 이상일 경우에는 고화처리, 극 저준위인 경우에는 안정화를 도모할 필요가 있다고 판단하고 있다.

국내의 방사성폐기물 분류는 당초 2단계(고준위, 중·저준위)로 구분하고 있었으나 현재는 IAEA의 2009년 방사성폐기물 분류 체계를 도입하여 4단계(고준위, 중준위, 저준위 및 극 저준위)로 분류하고 있다.

원전 해체과정에서 발생하는 오염 토양이나 폐콘크리트 파쇄물의 방사능 준위가 자체 처분 허용농도 이하인 경우에는 본 연구내용에서 제외하였다.

2. 처분부적합 방사성 폐기물의 발생원

원전 운영에서 발생하는 대부분의 방사성 물질은 핵분열과 방사화 정도에 의해서, 핵연료, 냉각재, 그리고 구성요소에 따라 다양한 종류로 형성된다. 정상적인 운전조건 하에서는 적은 양의 핵분열 생성물(0.1 %)이 핵연료 피폭재의 파손에 의해서 냉각재로 유출되는데 이는 냉각재와 직접 접촉하고 있는 우라늄으로 인한 것이며, 소위 “Trap” 우라늄이라 불리는 물질이 냉각재로 직접 핵분열생성물을 방출한다고 알려져 있다[2].

1차 냉각 계통에는 1차 냉각재에 존재하는 산소와 수소의 동위원소, 그리고 붕산(H_3BO_3)과 수산화리튬(LiOH) 같은 화학 첨가물과 부식생성물의 방사화로 인해 방사성 물질들이 존재하며, 냉각재로 유출된 핵분열 생성물과 방사화 물질들은 냉각수 1차 계통 내를 순환하고 있다. 순환하는 대부분의 방사성 물질은 원자로 냉각 계통 내에 있게 되고 방사성 물질 제거의 중요한 방법으로는 필터, 수지, 그리고 증발기 등에 의한다. 이들을 완전히 물리 화학적으로 제거하기는 어렵고, 또한 1차 계통을 순환하는 방사성 물질 중 일부는 원자로 냉각 계통 경계를 통과하여 시스템 외부로 유출되는 문제가 발생한다. 이러한 과정에서 유출된 물질로부터 기체 방사성폐기물과 액체 방사성폐기물이 발생되며, 원자로는 기체, 액체 방사성폐기물을 적당한 준위로 감소시켜 외부로 유출하는 시스템을 가지고 있다. 기체와 액체 방사성폐기물을 처리하는 과정에서 필터, 수지, 증발기 농축액, 건식 폐기물 등의 고체폐기물이 생성된다[2].

가. 원전 운영 방사성폐기물

원전에서 발생하는 방사성 액체폐기물의 발생원은 주로 다음과 같다(Fig. 1 참조).

- 붕소회수계통(Boron recovery system)에서 발생하는 발전소의 물 수지 (Water balance)를 유지하기 위한 또는 삼중수소 제어를 위해 사용된 공정수
- Dirty waste 또는 여러 가지 잡다한(Miscellaneous) 폐기물계통에서 방출되는 공정 액체 폐기물(Processes liquid waste)
- 증기발생기 취출 처리계통(Blowdown treatment system)에서 방출되는 공정 액체폐기물

- 화학폐기물(Chemical waste)과 복수탈염기 재생계통(Condensate demineralizer regeneration system)에서 방출되는 공정액체폐기물
- 터빈건물 바닥배수(Turbin building floor drain sump)에서 방출되는 액체폐기물
- 세정폐기물(Detergent waste)

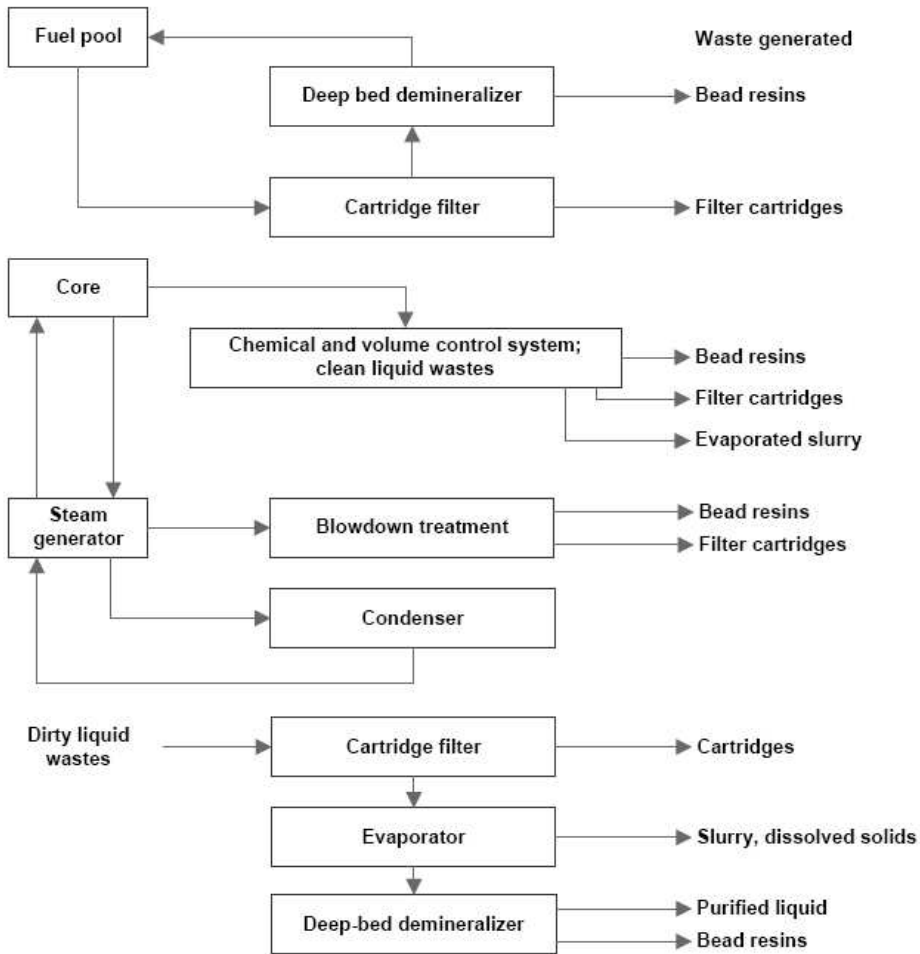


Fig. 1. 가압경수로에서의 방사성폐기물 발생원

방사성 액체폐기물의 발생량 및 함유 핵종은 발생원에 따라 달라지며, 발전소 설계와 운전조건 등에 따라 차이가 난다.

(1) 농축 폐액

농축 폐액은 증발기로부터 발생하며 방사성폐물의 약 40 %를 차지하고 있기 때문에 농축 폐액의 양을 감소시키는 것이 폐기물 감용의 주요 대상이 되고 있다. 실제 발전소에서는 농축 폐액을 콘크리트 고화를 이용하고 있으나 고화 과정에서 붕소의 고화처리에 어려움이 있어서 효과적인 고화처리를 위하여 적절한 첨가제를 이용하는 것이 일반적이다. 농축 폐액 속에 포함된 방사성 물질은 발전소마다 차이가 있고, 다양한 종류의 음이온들이 존재하기 때문에 고화체의 고화 능력이 저하하는 문제도 있다.

(2) 방사성 슬러지 및 슬러리 폐기물

균질폐기물에 해당하는 슬러지(Sludge)의 경우, IAEA에서는 수용액 상태에서 수분을 제거한 후 흡착되지 않아 여과로 제거되지 않은 침전물 그리고 기타 잔류 고형성분으로 정의하고 있다[3]. 방사성 슬러지의 대부분은 원자력 시설의 운영과 해체 과정에서 수처리 혹은 제염 처리 과정에서 발생하게 되며 2차 폐기물(Secondary waste)로 분류하고 있다. 한편 슬러리(Slurry)는 수용액상(또는 유기상)에 고형물들이 현탁 되어 유동성을 갖는 상태를 의미하고 있다. 슬러리 상태의 고형입자들을 응집제 등으로 침전시키거나 기타 방법으로 수분의 함유량을 줄여 침전시키거나 케이크(Cake) 상으로 만들게 되면 슬러지로 정의할 수 있다. 일반적으로 슬러지 폐기물을 방사성폐기물 처리 관점에서 고체폐기물로 분류하고 있는 반면에 슬러리는 폐기물 처리 관점에서는 액체 방사성 폐기물로 분류하고 있다. 한편 한수원에서는 원전 운영이나 해체과정에서 발생하는 슬러지들을 부식성 슬러지 폐기물, 바닥 슬러지, 섬프(Sump) 슬러지, 탱크 슬러지, 오일 슬러지, 유기성 슬러지, 콘크리트 슬러지, 토양 슬러지 및 혼합 슬러지 등으로 분류하고 있다.

나. 원전 해체 방사성폐기물

처분부적합 방사성폐기물은 원전 운영 외에도 원전의 해체 과정에서도 발생하며, 해체폐기물은 원자력시설의 해체로부터 발생되는데 폐기물로서 원자력시설의 운영정지 후 오염된 시설의 제염, 구조물의 해체 및 철거를 통해 최종적으로 부지를 제한 없이

사용 가능한 수준까지 방사능 준위를 낮추는 일련의 과정에서 발생하는 폐기물이다 [4]. 이러한 해체폐기물들은 해체 기간에 간헐적으로 다량 발생하며 해체 시 발생하는 콘크리트의 파쇄물과 계통의 제염으로 인하여 발생하는 제염 폐액 등을 예로 들 수 있다.

3. 처분부적합 방사성 폐기물의 발생량

2018년도 중·저준위 방사성폐기물 관리 시행계획에서는 중·저준위 방사성폐기물이 2017년 말, 200 μ 드럼 기준으로 총 13만 8,427드럼이 발생하였고 원전에서 발생한 102,852드럼은 각 원전 임시저장시설에서 관리하고 있으며(Table 1), 이중 처분시설에 반입된 14,272 드럼은 원자력환경공단에서 관리하고 있다고 언급하고 있다[5].

Table 1. 각 원전별, 연도별 중·저준위 방사성폐기물 발생 현황

연도	고 리	한 빛	월 성	한 울	신고리	신월성	합 계
~ 1999	27,778	12,073	4,216	9,690	-	-	53,757
2000	1,216	-718	370	900	-	-	1,768
2001	1,185	-1,108	664	752	-	-	1,493
2002	977	581	-654	1,126	-	-	2,030
2003	993	1,186	-495	830	-	-	2,514
2004	886	1,029	588	147	-	-	2,650
2005	1,064	1,282	639	-309	-	-	2,676
2006	1,461	2,129	707	-259	-	-	4,038
2007	2,417	1,792	717	629	-	-	5,555
2008	1,374	1,318	783	1,823	-	-	5,298
2009	1,036	1,212	1,769	961	-	-	4,978
2010	283	349	1,498	289	-	-	2,419
2011	261	345	615	354	207	-	1,782
2012	266	540	340	564	90	43	1,843
2013	490	373	400	492	121	95	1,971
2014	595	422	399	478	116	51	2,061
2015	786	331	342	278	100	87	1,924
2016	174	568	360	421	133	80	1,736
2017	315	995	337	506	117	89	2,359
합계	43,557	24,699	13,595	19,672	884	445	102,852

원전 소내에서 임시저장중인 방사성폐기물들은 대부분 균질폐기물인 농축 폐액, 폐

필터, 폐수지, 슬러지 등으로 구성되어 있다. 현재 처분부적합 방사성폐기물로 분류되어 국내의 원전에 저장되어 있는 폐기물의 현황은 Table 4와 같다.

Table 2. 폐기물 저장 현황 (200L 드럼, 2019, 3분기 기준)

구분	고리	월성	한빛	한울	합계
농축 폐액	11,742	-	4,624	3,649	20,015
슬러지	91	98	138	347	674
총 저장량	11,833	98	4,762	3,996	20,689

제2절 중·저준위 방사성폐기물 처분 인수 기준

방사성폐기물은 방사능 준위 및 핵종에 따라 처분 방식도 별도로 규정되어 있는데, 중준위는 심층 혹은 동굴 처분, 저준위는 심층 및 동굴과 표층 처분, 극 저준위는 중준위와 저준위 폐기물 처분에 사용되는 모든 처분방식을 적용 가능하다고 규정되어 있다. 이러한 방사성폐기물들은 국가별로 제시하고 있는 고시 및 법령에 따라 처분되어야 하며, 국내의 경우, 방사성폐기물들은 각각의 준위에 따라 폐기물 인수기준(Waste Acceptance Criteria, WAC)에 따라 처리 및 운반되어 폐기물 인수시설에서 처분인수 기준을 충족하여야 처분시설에 보관하여 관리할 수 있다.

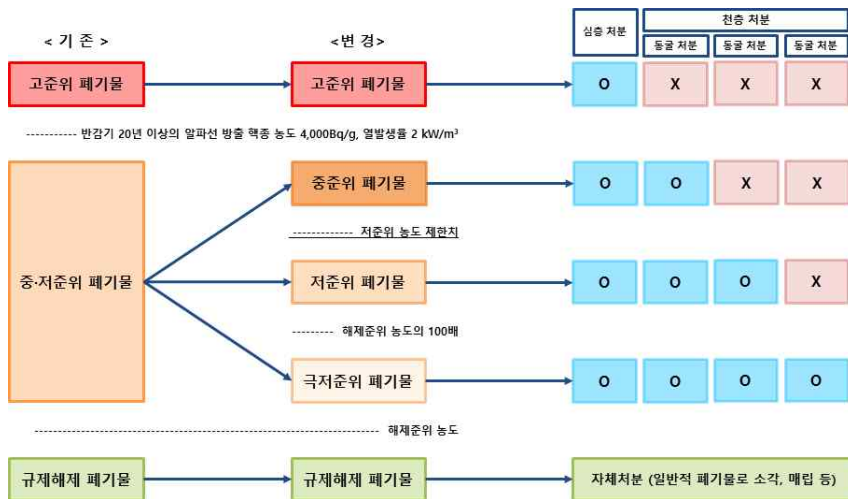


Fig. 2. 방사성폐기물 분류체계의 변화 및 처분방법

방사성폐기물을 처분하기 위해서는 처분장이 건설되는 부지의 특성, 방사성폐기물을 처분하여 관리하기 위한 시설의 특성, 그리고 처분장에서 관리되는 폐기물의 특성들이 규명되고 서로 보완되어야 처분시설의 성능을 향상할 수 있다. 특히 폐기물 특성은 물리적, 화학적, 방사선적 특성이 있으며 처분시설의 설계 및 처분 관련 기준 등의 결정을 위한 필수자료로 사용되고 있다.

IAEA에서는 폐기물의 특성을 Table 3과 같이 6가지 특성으로 세분화하여 제시하고 있으며[6], 국내에서는 폐기물의 처리 및 포장을 위한 일반 요건과 고형화 요건, 대상 폐기물에 따른 방사선적 특성과 물리적 특성, 화학적 특성, 마지막으로 인수시설에서의 대상폐기물에 대한 처분적합성 확인 방법이 명시되어 있다(Table 4).

Table 3. IAEA 폐기물 특성분류

항목	주요 사항
방사능 특성	총 방사능량, 방사능 농도, 표면선량률, 표면오염도, 임계안전성, 방사성안전성, 열 발생률, 균질성
화학적 특성	화학적 안정성(침출성, 용해성), 자연발화성, 인화성, 부식성, 폭발성, 가스발생, 반응성, 독성, 유기분해
물리적 특성	밀도(비중), 다공성(공극), 투과성(기체), 투수성(액체), 수축, 균질성, 유리수, 킬레이트제
기계적 특성	인장강도, 압축강도, 휨강도, 경도, 충격강도, 자유낙하, 구조적안전성
열적 특성	내화성, 열전도도, 연화점, 용융점, 용해점, 열팽창, 결빙/해빙 안정성
생물학적 특성	유기물분해, 전염성 폐기물, 생물학적 분해

Table 4. 국내 폐기물인수기준(WAC) 분류 조건

항목	주요 사항
일반 요건	<ul style="list-style-type: none"> · 처분 제한사항 (액체, 기체, 부식성, 독성, 폭발성 물질 등) · 포장물 표지 (총방사능량, 고유번호, 발생일자 등 주요 정보) · 포장물 무게 및 크기
고형화 요건	<ul style="list-style-type: none"> · 고형화 및 고정화 대상 폐기물 종류 · 고화체 시험방법 및 기준
방사선적 특성	<ul style="list-style-type: none"> · 핵종별 처분 농도 제한치 · 핵종 규명, 표면선량률, 표면오염도, 임계조건 기준
물리적 특성	<ul style="list-style-type: none"> · 입자성 물질 처리기준, 채움율, 유리수, 킬레이트제 기준
화학적 특성	<ul style="list-style-type: none"> · 발화성, 유해성, 폭발성, 부식성, 기체발생, 인화성, 감염물질 기준
처분적합성 확인방법	<ul style="list-style-type: none"> · 발생지 예비검사, 처분시설 인수검사 절차 및 방법 · 부적합 폐기물 조치 절차

1. 국내의 처분 인수 기준

가. 방사성폐기물 고화체의 일반 요건

중·저준위 방사성폐기물 처분 시설 안전성 분석 보고서에서 폐기물 포장물의 일반 요건으로 다음과 같은 내용물을 포함한 폐기물 포장물은 처분폐기물 특성 기준을 충족시키거나 그 내용물이 제거되지 않으면 직접 처분할 수 없다고 명시하고 있다.

- 액체 및 기체 폐기물
- 고형화 물질과 화학적으로 반응하는 물질
- 포장물 또는 포장물 사이에 사용되는 물질 또는 공학적 방벽 구조물을 부식시키는 물질
- 액상의 유기물(흡수제 내의 솔벤트, 희석제 등)
- 독성을 띠는 화학 물질 및 생물학적 물질
- 습한 환경에 반응하는 물질(나트륨 및 나트륨 혼합물)
- 폭발성 또는 급작스런 발열성 반응을 보이는 물질
- 핵종 누출과 이동을 촉진하는 물질

또한, 폐기물 포장물은 쉽게 식별될 수 있도록 외부에 폐기물 포장물의 총 방사능

량, 고유번호, 폐기물 발생 일자 및 발생 장소, 표면 선량을 등의 주요 정보를 읽기 쉽고 내구성이 있도록 표시하여야 한다. 폐기물 포장은 취급, 운반 및 처분 설비에 적합하게 표준화되어야 하며, 크레인과 지게차 사용이 용이하도록 제작되어야 하고, 폐기물을 담은 용기는 사전에 처분자의 승인을 받아야 한다고 명시하고 있으며, 세부적인 내용은 아래와 같이 기준이 제시되어 있다.

- 폐기물 포장물의 단위 중량은 콘크리트 포장물의 경우 6톤 이하, 강제 드럼 포장물은 1톤 이하여야 한다.
- 폐기물의 포장 단위 크기는 최소 0.5 m(L) × 0.5 m(W) × 0.8 m(H), 0.5 m(D) × 0.8 m(H) 이상이어야 하고 최대 1.5 m(L) × 1.5 m(W) × 1.5 m(H), 1.5 m(D) × 1.1 m(H) 이하여야 한다.

나. 방사성폐기물 고화체의 고형화 요건

폐기물 포장물의 고형화 요건은 크게 균질 폐기물과 비균질 폐기물로 나눌 수 있다. 처분부적합 방사성폐기물인 농축 폐액과 폐수지, 슬러지 등은 균질 폐기물로 분류가 되며, 균질폐기물은 고형화가 의무적으로 되어야 한다고 명시되어 있다. 고형화된 폐기물 고화체는 다음의 요건을 만족하여야 하며, 단 고건전성 용기를 사용하는 경우에는 고화체의 시험요건을 적용하지 않는다.

- 폐기물 고화체는 기준치 이상의 압축강도를 가져야 하며, 시멘트 등과 같은 경질 고화체의 경우 시편의 압축강도는 3.44 MPa(500 psig) 이상이어야 하고, 연질 고화체의 경우 시편의 수직 변형률이 3 %일 때 압축강도는 0.41 MPa(60 psig) 이상이어야 한다.
- 폐기물 고화체는 방사선 열화에 대한 저항성이 있어야 하며, 이온교환수지 폐기물 고화체 시편은 106 Gy, 그 이외의 고화체 시편은 107 Gy 범위에서 방사선 조사시험을 실시한 후 1)을 만족하여야 한다.
- 폐기물 고화체로부터 방사성핵종 누출은 처분의 안전성을 보장하기 위해 충분히 낮아야 하며, 고화체의 시편에 대한 침출 지수는 Cs, Sr, Co 핵종에 대하여 6 이상이어야 한다.

- 폐기물 고화체는 습기나 물에 접촉되어도 안정된 상태로 남아 있어야 하며, 고화체 시편에 대해 최소 90일 이상 침수시험을 실시한 후 1)을 만족하여야 한다.
- 폐기물 고화체는 저장 또는 운반 및 처분 시 계절변화 및 밤낮의 온도변화에 대한 저항성이 있어야 하며, 고화체 시편에 대한 열 순환 시험을 시행한 후 1)을 만족하여야 한다.

이러한 고화체의 시편에 대한 시험기준은 Table 5를 적용하며[7], 고화체의 건전성을 확인하기 위한 시험주기는 다음과 같이 제시되어 있다.

- 정기적인 유효성 확인은 4년마다
- 폐기물 처리공정 및 절차 변경으로 폐기물 특성이 변화될 수 있는 경우
- 압축강도 시험은 매 10배치 또는 1년 주기 중 먼저 도래하는 시기
- 모든 시험용 시편은 실제 폐기물 드럼에서 채취하거나 실 처리공정에서 제작. 단, 유리 고화체의 경우 실 처리공정에서 채취한 폐기물을 재용융하여 제작

이 외에도 유동성이 있는 폐기물을 고형화하는 경우에는 유동성 폐기물은 균질하게 고형화하여야 한다고 제시하고 있다.

Table 5. 폐기물 고화체 시험 기준

구분	시험 항목	관련 기준	
		경질 고화체 ¹⁾	연질 고화체 ²⁾
구조적 안전성	압축강도 시험	KS F2405	KS F2351
	침수 시험	NRC 「Technical Position on Waste Form, rev.1」	
	열 순환 시험	ASTM B553	
	방사선 조사 시험	NRC 「Technical Position on Waste Form, rev.1」	
침출성	침출 시험	ANS 16.1	
유리수 ³⁾ 측정	실물 크기 시험	ANS 55.1과 유사한 방법 적용	
	시편 및 잡고체	EPA Method 9095B(Paint Filter Liquid Test)	

1) 응력-변형 관계에서 취성을 갖는 물질(시멘트, 열경화성 수지, 유리 등)

2) 응력-변형 관계에서 소성변형을 갖는 물질(아스팔트, 열가소성 수지 등)

3) 고화체 및 비고화체 폐기물에 적용한다.

다. 방사성폐기물 고화체의 방사선적 특성

폐기물 포장물의 방사선적 특성으로는 핵종 함유량, 핵종 규명, 표면선량률, 임계안전, 표면오염에 관련된 규정이 포함되어 있으며 핵종 함유량의 경우, 폐기물 포장물 내의 방사성핵종 농도는 Table 6에 명시된 핵종별 처분 농도 제한치를 초과해서는 안 된다고 규정하고 있다.

Table 6. 핵종별 처분 농도 제한치

핵 종	처분 농도 제한치 (Bq/g)
H-3	1.11 E+6
C-14	2.22 E+5
Co-60	3.70 E+7
Ni-59	7.40 E+4
Ni-63	1.11 E+7
Sr-90	7.40 E+4
Nb-94	1.11 E+2
Tc-99	1.11 E+3
I-129	3.70 E+1
Cs-137	1.11 E+6
전알파	3.70 E+3

핵종 규명의 내용으로는 폐기물 포장물에 포함된 전체 방사능량의 95 % 이상을 구성하는 방사성핵종을 규명하여야 하며, Table 6에 제시된 핵종에 대해서 그 농도가 규명되어야 하며, 처분자가 요청하는 경우 핵종 규명에 사용된 시편은 확인 검사를 위해 처분자에게 제공되어야 한다고 언급하고 있다. 단, 전알파의 경우 2년마다 1회 단위 시설별(원전별 또는 유사 노형 별), 폐기물 종류별로 알파방출 방사성 핵종에 대하여 핵종별로 그 농도가 규명되어야 한다. 그러나 폐기물 조성에 변화를 줄 수 있는 요인이 발생한 경우에는 그때마다 알파방출 방사성핵종의 핵종별 농도가 규명되어야 한다.

폐기물 포장물의 최대 표면선량률은 작업자의 방사선 피폭 허용수준이 유지되도록 10 mSv/hr를 초과하지 않아야 하며, 별도의 운반 용기를 사용할 때는 운반 용기의 표면선량률을 적용하게 하고 있다.

또한 폐기물 포장물 내의 핵분열성물질의 함유는 임계조건이 일어나지 않도록 제한되어야 하며, 표면오염의 경우 외부표면에 대한 제거성 표면오염도는 임의의 표면 300 cm² 이상에 대하여 측정된 평균값이 베타·감마 방출체 및 저 독성 알파 방출체는 4 Bq/cm², 그 외의 모든 알파 방출체는 0.4 Bq/cm²를 초과하지 않아야 한다고 규정하고 있다.

라. 방사성폐기물 고화체의 물리적 특성

(1) 구조적 특성

고화체의 물리적인 특성 중 처분과 관련된 중요 특성으로는 균일성, 다공성, 구조 변형, 유리수 및 수분 함량 등이 있으며, 이중 균일성, 다공성 및 구조 변형 등은 기계적 특성에 영향을 미치는 인자들이다. 밀도는 해양처분의 경우에 중요 평가 대상이지만 육지처분의 경우는 단지 포장 용기의 채움 정도 및 균일성을 확인하는 정도이다.

입자성 물질을 포함하는 폐기물은 비분산성이 되도록 처리하여 포장되어야 하며, 입자성 물질을 포함하는 폐기물은 직경 0.01 mm 이하의 입자가 폐기물 무게의 1 % 이상 구성되어 있거나 직경 0.2 mm 이하의 입자가 15 % 이상 구성된 것을 말한다. 또한 고건전성 용기를 제외한 모든 포장물은 폐기물 내 공간 및 폐기물과 용기 사이 공간(공극률)이 가능한 최소가 되어야 하며, 채움율은 용기 내부 부피의 85 % (용기 상부 공간 15 % 이하) 이상이어야 한다.

(2) 유리수

고화체 내의 수분에 대한 특성으로는 유리수가 중요하다. 유리수란 폐기물 고화체 내에 고정, 흡수되지 않고 흘러내릴 수 있는 수분을 말한다. 고화체 내에 남아 있는 유리수는 시멘트 고화체의 경우 높은 pH를 가지며 일반적으로 철제 드럼의 부식 및 방사성 물질의 누출에 영향을 미치므로 장기 보관의 안정성에 직접적인 관련을 가진다.

국내의 경우 폐기물 포장물 내(內) 유리수의 양은 처분설비에 영향을 주지 않을 만큼 충분히 적어야 하며, 고건전성 용기의 경우는 폐기물 부피의 1 %, 그 외의 포장물은 0.5 %를 초과하여서는 안 된다고 명시하고 있다.

(3) 킬레이트제 등

킬레이트제 및 킬레이트 화합물을 함유하는 포장물은 핵종 이동 저감화를 위해 제한하거나 제거하여야 하며, 0.1 % 이상 잔존하는 킬레이트제 등은 그 화학명과 존재량

을 명시하여야 한다. 또한 킬레이트제 및 킬레이트 화합물이 폐기물 무게의 1 % 이상을 함유하는 폐기물은 고형화하여야 하며, 8 % 이상 함유하지 않아야 한다고 제시되어 있다.

2. 방사성 폐기물의 고화

폐기물의 안정화(Stabilization)는 폐기물과 이를 구성하는 유독물질을 환경으로의 이동속도와 독성의 정도를 감소시킨 상태로 전환하기 위하여 첨가제(반응물)를 적용하는 공정을 뜻하며, 유해폐기물 중 유해 물질을 분해하거나 무해화하여 독성을 제거하는 공정이라 정의 할 수 있다. 고형화(Solidification)의 경우, 고체를 포함한 충분한 양의 고화제를 유독물질에 첨가하여 결과적으로 고형물질을 형성시키는 공정을 말한다. 그러나 안정화 및 고형화는 처리 공정상 동시에 이루어지기 때문에 보통의 경우 고형화라는 표현을 사용한다[8]. 폐기물의 안정화와 고형화는 유해폐기물에 의한 환경오염의 방지나 유해폐기물의 취급개선을 목적으로 하고 있다. 환경오염의 방지를 위한 고형화 처리는 유해폐기물 중에 함유된 중금속 등이 환경 중의 매체(물)를 통해서 지하수나 토양 등을 오염시키지 않도록 무해화시키거나 용출이 어려운 형태로 변화시키는 것이며, 유해폐기물의 취급개선은 유해폐기물의 운반이나 처분과정에서 비산을 방지하거나 침출수의 누출을 방지하는 것이다[8].

고형화 공정은 고화체를 만드는 데 사용되는 고화 재료의 특성에 따라 크게 무기성 공정과 유기성 공정으로 대별된다. 유기성 고화재료는 대부분 소수성(Hydrophobic)의 특성이 있기 때문에 유기 독성물질에 적합하며, 에너지 및 장비 등의 비용이 많이 들기 때문에 방사성폐기물과 같이 유해성이 매우 높은 경우에만 한정적으로 이용되고 있다. 무기성 고화재료는 대개 시멘트 반응성을 가지고 있어 적절한 함수율의 무기성 슬러지(중금속류가 함유된 것)의 고형화에 적합하다[8].

액체 방사성폐기물의 경우, 폐액 증발기를 통하여 폐기물 내의 물은 증발 처리되고 증발기에 남아 있는 농축 폐액은 농축 폐액 저장탱크로 이송되어 고화처리 되며, 원심분리기로 처리하여 발생하는 슬러지와 관리구역 배수조의 바닥 슬러지와 같은 응집 및 침전 슬러지들은 고화 매질과 함께 철제 드럼 또는 시멘트 용기에 넣어 잘 혼합하여 폐기물들의 수송과 보관이 용이하도록 고형화 작업을 한다. 이렇게 방사성폐기물을 안정화된 형태로 전환하기 위한 고형화 공정은 일반적으로 사용되는 고화 매질의 종류에

따라 시멘트 고화, 아스팔트 고화, 파라핀 고화, 유리화, 폴리머 등으로 구분하고 있다.

가. 시멘트 고화 (Cementation)

시멘트의 주성분은 칼슘(CaO), 규산(SiO₂), 산화알루미늄(Al₂O₃), 산화철(Fe₂O₃) 등의 산화물로서, 이들은 4가지 시멘트 화합물을 만든다. 시멘트는 물과 반응하여 수화작용을 통하여 응결하게 되는데, 이때 주목해야 할 것은 3CaO·SiO₂와 2CaO·SiO₂의 수화반응에서 수산화칼슘이 발생함으로써 pH를 높인다는 사실이다. 따라서, 수화반응 결과 알칼리성 환경이 조성되어 중금속이 고형화에 대단히 유익하다. 또한, 포졸란을 포틀랜드 시멘트와 섞을 경우 수화반응에서 생성된 수산화칼슘(Ca(OH)₂)과 포졸란이 반응하게 되어 수산화칼슘(Ca(OH)₂)을 소모하면서 수화된 시멘트 고화체에 있어서 C-S-H의 비율을 증가시키게 된다. 이와 같은 포졸란을 시멘트와 섞어서 사용하게 되면 콘크리트의 시공성(Workability)이 증가하고, 수화열의 발생이 낮아지며, 초기 강도가 증진되며, 수밀성과 황산염 이온의 침식에 대한 저항이 향상되는 장점이 있다. 시멘트 고화법은 중·저준위 방사성폐기물의 고화 방법으로 가장 많이 사용되고 있으며 주로 고체를 많이 함유한 슬러지, 농축 폐액, 소각재, 이온교환수지 등을 처리하는 데 적합하다. 이때 사용되는 시멘트는 ASTM Type I, II의 규정을 따르며 시멘트에 대한 폐기물의 중량비는 20 ~ 30 % 정도 이다. 시멘트 고화시 방사성핵종이 Sr, Pu, Am인 경우에는 핵종이 시멘트 내에 잘 결합하기 때문에 좋으나 Cs, Ru인 경우에는 핵종의 침출율이 상당히 높아 이에 대한 대책이 필요하다.

나. 열가소성 미소 캡슐화 (Thermoplastic Macroencapsulation)

이 공정은 폐기물을 100℃ 정도에서 건조한 후 플라스틱성 재료(역청 아스팔트(Asphalt Bitumen), 파라핀(Paraffin), 폴리에틸렌(Polyethylene))와 혼합시키는 방법으로 냉각 시 고형화되어 폐기물 입자가 플라스틱으로 감싸게 된다. 특히 포졸란(Pozzolan) 및 시멘트 고형화로는 처리할 수 없는 용해성이 높은 독성물질을 효과적으로 고형화할 수 있는 장점이 있다. 그러나 특별한 장비와 숙련된 기술이 필요하고 폐기물 건조와 플라스틱 용융에 에너지가 많이 소요되는 단점이 있다.

(1) 아스팔트 고화 (Bituminization)

열가소성 미소 캡슐화 공정의 한가지인 아스팔트 고화 공정은 폐기물의 고화 매질로 아스팔트를 사용하는 공정으로서 주로 유럽에서 개발되어 광범위한 운전 경험을 통하여 입증되었다. 이 공정은 100 °C 이상의 아스팔트와 방사성폐기물을 혼합시켜 고화시키며, 이때 폐기물 내에 함유된 수분의 99.5 % 이상이 증발하고 나머지 폐기물과 아스팔트가 저장 용기에 포장되어 냉각된다. 최종생성물의 조성은 아스팔트 60 %, 폐기물 40 % 정도이다.

최종 고화체의 표면선량율은 시멘트 고화체보다 높으나, 시멘트 고화체에 비해 감용비가 훨씬 크고 침출률은 훨씬 작다. 반면에 아스팔트 고화체는 용점이 낮고(60 °C), 기계적 강도가 낮으며, 물과 접촉 시 팽윤 현상을 나타내는 점이 단점으로 지적되고 있다. 현재 사용되고 있는 아스팔트 고화 공정 중 대표적인 것은 회분식 공정, Extruder 공정 및 박막 증발 공정(Thin film process)이 있다.

(2) 폴리머 고화 (Polymerization)

이 공정은 고화 매체로 폴리머를 사용한다. 이때 사용되는 폴리머는 Polyester/Epoxy, Urea Formaldehyde, Polyethylene, Styrene-Diphenyl Benzene 등 여러 가지가 있으며 사용 폴리머에 따라 혹은 60 °C에서 서서히 Monomer의 중합반응이 일어난다.

다. 유리화 (Vitrification)

유리화 공정은 사용후핵연료의 재처리과정에서 발생한 고준위 폐액을 고화하기 위한 공정으로 프랑스, 영국, 일본 및 미국에서 개발 중 또는 사용하고 있다. 일반적으로 고준위 폐액의 고화처리 공정은 증발, 가소 또는 탈질산 및 유리화의 3단계로 나누어 생각할 수 있다. 재처리 과정에서 얻어지는 폐액 중 대부분의 원소는 질산화물로 용해되어 있기 때문에 2단계 공정을 탈질산 공정이라 한다. 제1단계와 2단계에서 얻어지는 고화체는 가소물(calcine)이라고 하는데 이 가소반응은 500 ~ 800 °C에서 종료된다. 제3단계에서는 제2단계에서 얻어진 분말상의 가소물 첨가제와 혼합하여 900~1,000

℃에서 유리(주로 Borosilicate glass)와 함께 용융시켜 고화체를 제조하는 공정으로 유리화를 위한 첨가제는 폐기물의 조성과 공정에 따라 선택되며 실리콘(Silicon), 티타늄(Titanium) 등이 사용된다.

제3장 처분부적합 방사성폐기물의 펠릿 성형

원자력시설에서 발생하는 분말형 방사성폐기물(농축 폐액의 건조 분말, 폐 이온 교환수지, 감손 우라늄 폐기물, 슬러지 및 소각재 등)을 처분하기 위하여 일반적으로 폐기물의 특성을 고려하여 그에 적합한 고화 매질로 고화하게 된다. 지금까지의 고화 방법들은 폐기물과 고화 매질의 혼합물을 교반하는 방식으로 균질하게 혼합하여 고화를 하였지만, 폐기물 입자들 사이로 고화 매질이 침투하기가 어렵고 폐기물 입자들을 고화 매질이 감싸야 하기 때문에 방사성폐기물의 함입률에 제한을 가질 수밖에 없다. 결과적으로 이는 최종적으로 생산되는 고화체의 부피를 크게 증가시키게 되는 것이다. 그러나 반대로 방사성폐기물의 분말을 조그마한 덩어리(펠릿(Pellet) 또는 과립물(Granulation))로 전환해서 폐기물과 고화 매질의 혼합물을 교반시키지 않고, 이들 방사성폐기물 덩어리 사이의 공간을 액상의 고화 매질로 채워 고화하는 경우에는 부피 증가 현상을 방지할 수 있으며 혼합방식과 비교하였을 경우에 비하여 높은 감용 효과를 기대할 수 있다.

제1절 분말의 펠릿 성형에 대한 이론적 배경

1. 분말의 펠릿 성형기술 분석

펠릿화(Pelletizing)는 분말의 특성을 잃어버리지 않으면서 보다 커다란 점착성의 덩어리를 형성하도록 미세한 분말들이 서로 함께 뭉치게 하는 공정(Agglomeration)이라고 할 수가 있다. 이를 위하여 기계장치를 이용하는 방법으로는 Forced screening, Compaction, Extrusion 및 Fusion method 가 있으며 이들 중에서 기계장치를 이용하여 분말로부터 펠릿, 과립 및 정제 등으로 성형하는 컴팩션 방식은 분말과 성형제재(Binder)를 혼합한 후, 이들을 고압축력으로 가압하는 방식인데 이 방식에는 롤 컴팩션(Roll Compaction), 롤 브리켓팅(Roll Briquetting), 그리고 타블렛(Tableting) 방법이 있다.

펠릿 및 과립형으로 성형하는 방법은 분말의 상태에 따라 습식 과립법과 건식 과립법으로 분류할 수 있다(Fig. 3[9]).

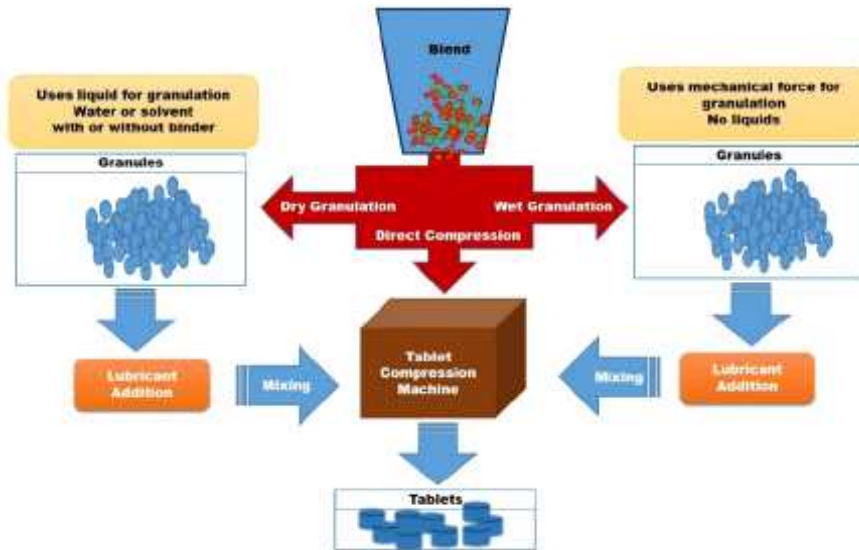


Fig. 3. 과립화(Granulation) 공정의 개념도

습식 과립법의 경우, 분말의 성형을 위해 분말에 유체를 첨가하여 분말 혼합기로 균질할 때까지 섞은 후 성형을 하는 방식으로 분말에 첨가되는 유체는 분말의 굳기나 형상을 주기 위한 목적으로 첨가되기 때문에 주로 물, 에탄올 및 이소프로판올 등이 사용된다. 건식 과립법은 습식과립과는 다르게 액체 성분이 사용되지 않는 공정이며, 액체가 사용되지 않기 때문에 미세 분말 화합물을 압축 및 과립화시키는데 사용된다. 건식 과립화에서는 고압력에 의해서 성형이 진행되며, 타정방식과 롤 컴팩터(Compactor) 방식으로 진행이 가능하다. 습식 과립법을 적용하여 분말을 성형하기 위해선 분말에 함유된 수분으로 인해 타정방식을 적용해야 하는데, 타정방식은 프레스의 타정작업으로 분말의 분산이 발생하여 주변 환경에 이차적인 오염을 발생시킬 수 있으며, 롤 컴팩터 방식을 적용할 수 없는 문제점과 건식 과립법보다 설비에 대한 비용이 많이 들고 공정이 복잡하다는 문제가 발생할 수 있다.

2. Johanson의 롤 컴팩션 모델

롤 브리켓은 롤 컴팩션에서 도출되었기 때문에 롤 컴팩션에 대한 이해가 필요하다.

롤 컴팩션(compaction)은 1960년대에 금속판을 만드는 데 널리 이용되었고, 이어서

분말의 브리켓 제조가 요구되자 롤 프레스의 설계와 운전을 위하여 Johanson은 물질의 특성, 프레스 크기 및 운전변수들에 대한 수학적 모델을 만들었다[10]. Johanson은 기하학적 변수와 롤 사이에서 연속적인 전단변형을 겪는 물질의 소성 항복 법칙들과 관련하여 응력 함수를 설명하였다. 그의 이론은 분말 거동이 분명하거나 쉽게 결정할 수 있는 방식으로 Fig. 4[11]과 같이 몇 개의 영역으로 나눌 수 있으며 아래와 같은 사실에 기초하였다.

- 우선 분말은 일정한 압력으로 스크류 공급 장치나 중력에 의한 공급장치로 두 개의 롤 사이의 영역 내로 주입된다. 여기서 분말은 분말 상태의 겉보기 밀도를 그대로 갖고 있으며, 중력에 의해서도 밀도 변화는 없다.
- 분말이 두 롤 사이로 들어갈 때, 롤 벽면에 대하여 가압 되기 시작하나 분말이 미끄러질 정도의 압력은 아니다. 미끄러짐 영역(Slip region)으로 불리는 이 영역에서 분말은 약간의 전단변형을 겪게 된다.
- 롤 표면의 일정 부분에서 분말은 미끄러지고 롤의 회전속도로 움직이기 시작한다. 이 부분을 잘림 각(Nip region)이라고 한다.
- 잘림 각(Nip region)은 압축 영역(Compaction region) 또는 잘림 영역(Nip region)의 시작점이다. 여기서 분말은 압력이 가해지는 지점은 두 개의 롤 사이로 이끌려지며, 이어서 롤 사이의 가장 작은 영역(Gap size)과 동일한 두께로 압축될 때까지 전단변형이 일어난다. 이 영역에서 분말은 롤 표면에서는 막대기(Stick)로 가정되거나 롤과 동일한 속도를 갖게 된다.
- 압축된 이후 펠렛은 롤 속도보다 빠른 속도로 출구 영역(Released region)으로 들어가게 된다. 이 지점에서 펠렛은 무시되거나 매우 작은 팽창이 일어나기도 한다.

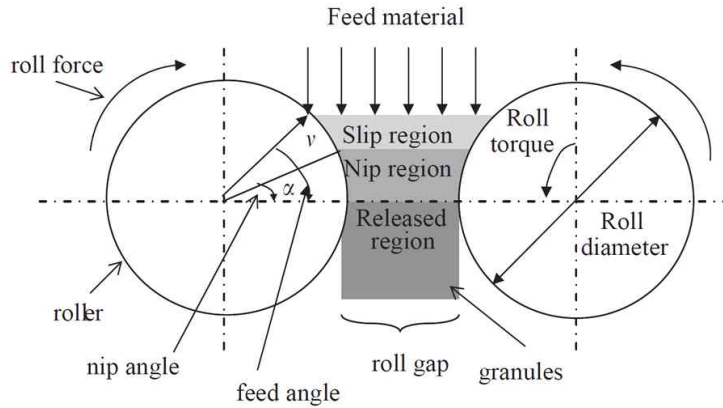


Fig. 4. 롤 컴팩션(Roll compaction) 개념도

롤 컴팩션에 영향을 미치는 인자들로는 두 개의 롤 사이의 간격(Roll gap), 롤 회전 속도(Roll speed), 분말의 공급량 및 마찰율(Friction ratio) 등의 장치 기하학적 변수, 장치의 운영변수 및 분말의 물질 특성이 있다(Table 7 참조). 특히 마찰율(두 개의 롤 회전속도의 비, Front roll speed/Back roll speed)은 분말과 롤 표면사이의 슬립스틱(Slip-Stick) 거동에 영향을 주며, 간접적으로 펠렛 형성에 매우 중요한 접착력이나 마찰력에 영향을 줄 수도 있다. 압축 인자, 내부 마찰의 유효 각도, 그리고 벽면 마찰 각도 등과 같은 물질 특성도 매우 중요하다.

Table 7. 롤 컴팩션의 주요 인자

Geometric Parameters	Process Parameters	Material Properties
- Roll diameter	- Roll force	- Particle size
- Roll width	- Roll torque	- Mixture composition
- Roll gap	- Feed pressure	- Internal (Angle of) friction
	- Gravity	- Wall friction
	- Inertia	- Compressibility
	- roll surface	- Permeability

가. 분말 거동(Powder behavior)

롤 컴팩션 과정 중, 분말의 이송 거동은 미끄러짐(Slip)과 잘림(Nip) 영역에 기초하여 설명할 수가 있는데, 미끄러짐 영역에서, 분말들은 조밀화 되면서 두 개 롤 사이로 강제로 이송됨에 따라 미끄러지는 현상이 분말과 롤 표면 사이에서 일어난다. 잘림 영역에서는 분말이 압축되고 재배열되기 때문에 플라스틱 변형처럼 치밀화(밀도의 증가)가 일어난다. 잘림 영역의 범위는 잘림 각도(Nip angle)에 의해 결정되는데 이 각도는 공급되는 분말의 물리적 특성, 분말의 공급 방식과 롤의 물리적 특성에 의존하게 된다. 폭기와 같은 문제와 밀도의 급격한 증가는 항상 이 영역에서 일어난다. 미끄러짐과 잘림 영역의 아래 영역은 배출 영역이라 할 수 있는데, 분말의 탄성 영향이 드러나는 영역이기도 하다.

나. 미끄러짐 영역(Slip region)

분말을 등방성, 점착성 및 압축성 물질로 가정함으로써 연속적인 전단 변형에서의 분말의 거동을 설명할 수가 있다. 미끄러짐 영역에서의 분말 특성은 내부 마찰의 유효 각도와 벽면 마찰각도에 의해 결정되는데, 내부 마찰의 유효 각도인 δ 는 두 개의 롤 사이에 있는 분말의 평면변형(Plane-strain) 조건을 나타내고, 벽면 마찰각도인 ϕ_w 은 롤 표면에서 전단력과 수직력의 관계를 나타낸다. 이 개념으로 롤 벽면에서의 전단 응력(Shear stress)과 수직 응력(Normal stress)은 공급각도인 ν 를 써서 나타내면 식 (1) 과 같다.

$$2\theta = \pi - \arcsin\left(\frac{\sin\phi_w}{\sin\delta}\right) - \phi_w \quad (1)$$

공급 각도는 두 개의 롤 상부 위에 열려있는 공급 두께에 의존하는 이송 각도이다.

다. 잘림 영역(Nip region)

잘림 영역에서의 분말 거동은 단순한 일축형 압축시험에서의 타블렛 물질 법칙을 따

른다고 가정한다. 적용된 압력-부피 관계로 부터 분말의 압축인자 k 는 높게 적용된 압력에서 얻을 수가 있으며, 이 값은 장치의 설계를 위하여 대단히 중요하다. 롤 직경에 대한 롤 간격의 비인 R_g/D_r 가 1보다 매우 작고, 롤 표면은 매우 매끄러울 경우에, 잘림 각도는 분말의 특성들인 K (압축인자), δ (내부 마찰각) 및 u (분말의 공급각)에 크게 의존하게 된다.

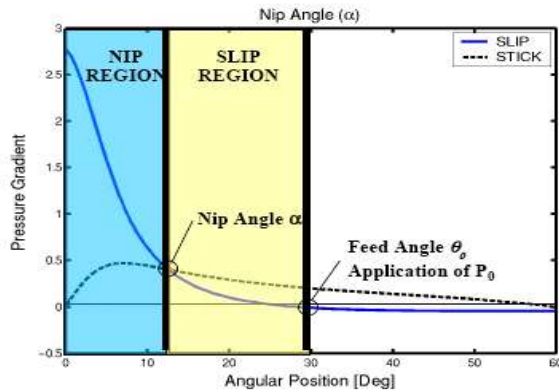


Fig. 5. 잘림 영역(Nip Angle)의 정의

라. 내부 마찰의 유효 각도(Effective angle of internal friction)

Fig. 4는 전형적인 롤 컴팩션 공정의 기본 개념도를 나타낸다. 분말 입자들이 서로 서로 접촉할 때에는 언제든지 분말의 내부 또는 입자 사이에 마찰이 존재하게 되며 전단력 셀 시험(Shear cell test)을 이용하여 미세 입자형 분말 및 벌크 고체의 유동 특성을 측정할 수 있다. 분말 입자들의 마찰은 수직 응력과 전단 응력(Shear stress)의 그래프(Fig. 6)에서 항복 곡선(Yield curve)에 의해 특성화되는데 항복 곡선 아래의 각도가 바로 내부 마찰 유효 각도(Effective angle of internal friction)가 된다. 이 개념은 Mohr-Coulomb로부터 유도된 것이며 Fig. 6처럼 단순화시킬 수가 있다. 항복 곡면 궤적들의 결합으로 유효 항복 곡선과 내부 마찰 유효각(δ) 알게 되고, 이때 이 내부 마찰 유효각은 분말의 흐름성에 대한 저항(분말의 항복 거동)을 나타내게 된다. 분말의 흐름은 δ 의 각도가 커질수록 감소하게 되고, 대부분의 일반적인 각도는 $25 \sim 70^\circ$ 사이에 있으며, 전단력 셀 시험을 사용하지 않고 접착성의 분말에 대하여 내부 마찰의 유효각인 δ 를 직접적으로 추정하기는 어렵다.

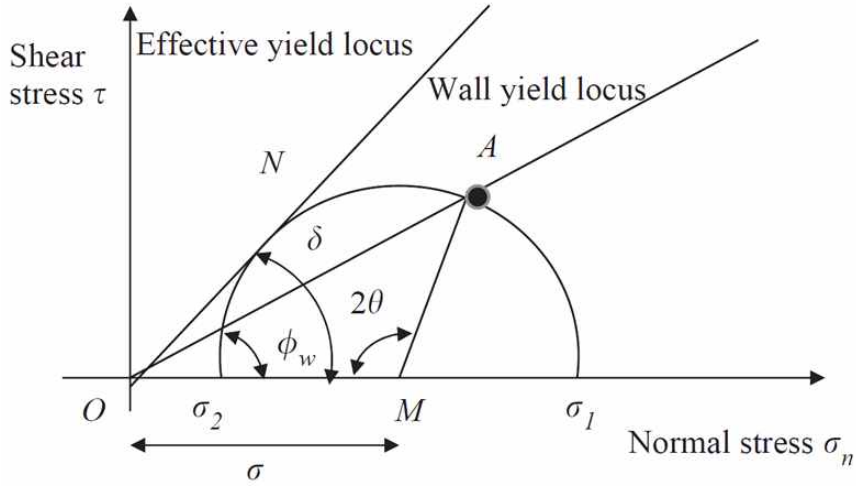


Fig. 6. Effective angle of internal friction and angle of wall friction

마. 롤의 운전변수

롤 직경, 롤에 가해지는 힘, 그리고 롤 토크 등의 롤의 설계에 대한 것과 롤 간격, 롤 회전속도, 분말의 공급량 그리고 마찰 비율 등의 롤 운전 변수들은 롤 압축 공정의 성능에 많은 영향을 준다.

(1) 롤 직경

롤의 직경, D_r 은 롤의 회전에 서로 다른 조건을 달리하는 데 있어서 조정할 수 없는 고정된 변수이다. 롤에 의해 발생하는 최대의 압력은 롤 직경에 의해 크게 영향을 받게 되는데, 아래 식으로 나타낼 수 있다.

$$P_{\max} = R_1 P_0 \frac{1 - \sin \delta}{1 + \sin \delta} \left(\frac{1 - f}{d + R_g} \times [D_r (1 - \cos \alpha) \cos \alpha + d + R_g \cos \alpha] \right)^K \quad (2)$$

여기서,

- R_1 : 압력 비율의 로그
- P_0 : 롤 비트에 적용된 공급 압력
- d : 롤 브리케트의 포켓 깊이
- f : 재순환율(공급 속도에 있어서 롤 비트로부터 손실된 분말의 비)
- R_g : 롤 간격
- α : 잘림 각도
- δ : 내부 마찰의 유효각도
- K : 압축 인자

롤 비트에서의 공급압력 P_0 는 중력에 의한 것일 경우에는 아래 식과 같다.

$$P_0 = 0.4\rho_0 l \quad (3)$$

ρ_0 는 롤에 의해 압축되기 전의 분말 초기 겉보기 밀도이고, l 은 롤의 폭(두께)이다.

(2) 롤 간의 힘(Roll force)

실제의 장치 운전에서 롤을 분리하는 힘 R_{sf} 는 롤 압축공정의 성능을 측정하는 데 이용되고, 아래와 같이 표현된다.

$$R_{sf} = \frac{R_f}{l} \quad (4)$$

R_f 는 두 개의 롤(Front and back roll)로부터 발생하는 압력의 평균치, l 은 롤의 폭(두께)이다. Johanson은 롤 간의 힘인 R_f 를 1차식 모델을 사용하여 아래와 같이 나타냈다.

$$R_{sf} = \sigma l D_r \frac{F_r}{2} \quad (5)$$

여기서, σ 는 매우 양호한 품질의 과립(펠릿)을 성형하는데 가해진 압력이고, l 은 롤의 두께, F_r 는 서로 다른 압축인자(K)에서 $(d + R_g)/D_r$ 의 함수에서 얻어지는 힘 인자이다.

(3) 롤 토크(Roll torque, Roll force)

롤 압축으로 인해 발생한 롤 토크 T_q 는 벽 마찰 미끄러짐 계수 μ_r 을 계산하는 데 이용된다(후에는 Slip-Stick이 일어나는지 여부를 결정함). 벽 마찰에서의 미끄러짐 계수인 μ_r 는 아래 식에 의해 계산될 수 있다.

$$\mu_r = \frac{\tau}{R_f} \quad (6)$$

전단력 $\tau \leq \mu_r R_f$ 인 것에 있어서, R_f 는 롤의 힘, τ 는 전단력으로써 아래 식으로부터 얻어진다.

$$\tau = \frac{T_q}{R} \quad (7)$$

여기서, R 은 롤의 반경이다.

롤 토크, T_q 는 일정한 수평 방향의 압축 힘을 갖는 롤의 축 방향에 관하여 모멘트들을 합함으로써 계산될 수도 있다.

$$T_q = \sigma l D_r^2 \frac{T}{8} \quad (8)$$

T 는 토크 인자이며, 롤 토크(파워)는 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$R_p = 2.796 \times 10^{-3} P_{\max} l D_r^2 T S_r \quad (9)$$

S_r 은 롤의 회전속도(rpm)이고 P_{\max} 는 최대로 발생한 압력이다.

(4) 롤 회전속도(Roll speed)

롤의 회전속도인 S_r 은 잘림 영역을 통해 지나가는 분말을 가압하는 시간(또는 유지 시간)을 결정하며, 이는 잘림 영역을 통해 나가는 물질의 양이나 처리량(C_c)과 밀접하다.

$$C_c = 60 \rho_g \pi D_r l R_g S_r \quad (10)$$

여기서 D_r : 롤 직경(cm)

l : 롤 두께(cm)

R_g : 롤 간격(cm)

S_r : 롤 회전속도(rpm)

ρ_g : 겉보기 밀도(kg/cm^3)

롤 내에서의 가압 시간, t_p 는 아래와 같다.

$$t_p = \frac{F_r}{2\pi S_r} \quad (11)$$

여기서, F_r 은 힘 인자(force factor)이다.

3. 펠릿 성형을 위한 분말의 입도 분류

분말의 물리적 특성 중 물질의 압축성(Compressibility)과 입자 크기(Size distribution)는 매우 중요하다. 원전 운영 과정에서 발생하는 방사성 슬러지(봉산 농축 폐액, 증기 발생기 등)의 화학적 조성 등에 대한 연구 결과들은 일부분 존재하고 있지만, 성상이나 입자 크기 등의 물리적 특성에 대하여 수행된 연구 결과들은 전혀 없는 상태이다. 분말의 성형 대상은 원전 운영 슬러지 외에도 오염 토양 중 제염이 곤란하여 자체 처분을 할 수 없는 크기의 입자들로 구성된 토양도 이에 해당하므로 토양의 입도 크기도 고려할 필요가 있다.

토양은 다양한 종류의 물질들의 복합체이며, 그 속에는 무기물과 유기물이 혼재되어 있다. 이들 입자들의 굵기에 따라 자갈(Gravel), 모래(sand), 미사(Silt), 및 점토(Clay) 등으로 구분하고 있다. 이러한 토양 입도의 구분은 미국 농무성(USDA) 기준, 국제(International) 기준 및 구소련(USSR) 기준에 따라 다소 차이가 있지만 주로 미국 농무성(USDA)에서 분류한 방법이 많이 이용되고 있다. 우리나라에서는 1975년에 개정된 미국 농무부(United State Department of Agriculture, USDA)의 분류 방법(Soil taxonomy)을 채택하여 사용하고 있다[12, 13].

미국 농무부(USDA)에서 제시하고 있는 토양의 입도 분류를 기준으로 토양의 주 구성요소인 점토(Clay)¹⁾, 실트(Silt)²⁾, 그리고 모래를 기준으로 입도 분류를 나누고 각 구성요소의 입도 크기를 Table 8에 정리하였다.

Table 8. 토양 입도 분류 (mm)

점토	실트	모래	
		세사	조사
0.002 이하	0.002 ~ 0.02	0.02 ~ 0.2	0.2 ~ 2.0

1) 점토(Clay)는 입자지름 0.002 mm 이하 미세토. 단위 무게당 표면적이 가장 넓으므로 수분 및 양분 보유력 강함.

2) 실트(Silt)는 입자지름이 0.002 mm 이상, 0.02 mm 미만의 흙. 소성이 낮고 기선 상태에서의 강함이 작음.

제2절 모의 폐기물 시료의 제조 및 물리 화학적 특성

원전의 운영과정에서 부산물로서 발생하는 폐기물은 그 형태에 따라 기체, 액체, 고체폐기물로 분류할 수 있으며, 국내의 원전에서 발생하는 방사성폐기물에 포함된 방사성 핵종들은 크게 다음의 과정에서 생성된다[2].

- 1차 냉각재의 중성자와 반응을 통해 생성되는 방사화 생성물
- 핵연료 집합체 구조물의 중성자와의 반응에 의해 생성되는 방사화 생성물, 계통의 부식에 의해 생성된 방사화 부식생성물 및 기타 냉각재로 운반되어 오는 물질
- 핵연료 피복재 표면에 잔존해 있는 핵연료 물질의 핵분열 생성물 및 핵연료 피복재의 손상 부위를 통해 누출된 핵분열 생성물

원전에서 발생하는 중·저준위 방사성폐기물은 중성자와 핵연료의 붕괴로 인하여 핵분열 물질과 부식생성물들이 폐수지, 폐필터, 농축 폐액, 그리고 잡고체 등의 형태로 발생하는데 그 특성에 따라 균질성 폐기물과 비균질성 폐기물로 분류할 수 있다.

비균질성 폐기물인 잡고체나 폐필터의 경우, 방사선 작업 종사자들이 사용한 방호복, 덧신, 장갑 등의 폐기물이 주를 이루고 있으며 폐기물 인수기준에 따라 종류별로 분류 후 포장하거나 건조 후 고화 혹은 단순 포장을 통하여 인수검사시설로 운반되어 처분적합성 검사 후 처분되고 있다. 하지만 균질성 폐기물인 농축 폐액, 폐수지, 슬러리 등의 방사성폐기물들은 대부분 습윤 상태의 방사성폐기물이며 수분을 제거해 분말상태로도 관리되고 있다. 이러한 균질폐기물들은 폐기물 인수기준의 액체 및 기체 폐기물은 처리할 수 없다는 일반요건에서의 처분 제한사항과 물리적 특성에서 명시하고 있는 비분산성 조건, 고형화 요건에서 필수조건으로 고형화를 제시하고 있으며, 생성된 고화체는 고형화 요건에서 제시하고 있는 기계적 건전성을 충족시켜야 한다고 제시하고 있다.

대부분 슬러지는 모재(Base material)에 따라 철, 마그네슘, 칼슘 및 알루미늄의 수산화물로 구성되고, 비교적 독성은 없는 편이다. 하지만 일부는 크롬, 구리 및 니켈 등의 독성 물질도 함유하는 경우도 있다. 폐수지는 철, 구리, 아연, 망간 및 붕소 등의 독성 및 비독성 물질을 모두 포함하는 것으로 알려져 있으며, 증발 농축 폐액은 대부

분이 붕산 화합물로서 핵분열 핵종 및 방사화 핵종들이 포함되어 있다.

또한 원전의 유지보수과정에서 장치의 윤활유를 제거하거나 세척하는 과정에서 유기 용매가 발생하고, 제염에 의해 유기화합물 등도 발생한다. 이러한 폐기물 내에는 납, 수은 및 바륨 등의 금속들이 포함되기도 한다. 일반적으로 원전의 냉각수 내에는 크롬 또는 표면에 물질이 부착되지 않도록 하는 화합물이 함유되어 있기 때문에 필연적으로 필터 슬러지가 발생하게 된다.

각종 문헌 및 발표자료 등을 참고하여 원전에서 발생하는 슬러지의 종류와 그에 대한 무기 화학적 조성을 조사하여 Table 9에 정리하였다. Table 9에서 보듯이 부식성 슬러지의 상당 부분은 주로 철(Fe) 성분이며, 바닥이나 Sump 슬러지에도 철 성분이 주를 이루고 있다. 반면에 콘크리트와 토양 슬러지에는 상대적으로 철 성분이 적었다. Sump와 토양의 슬러지에서는 실리카가 주를 이루고 있는데, Sump 슬러지의 경우, 실리카 성분이 상대적으로 많은 것은 원전의 벽 자체가 콘크리트로 구성되었기 때문이라 판단되지만, 바닥 슬러지에 비하여 상당히 많은 양이 포함된 부분은 바닥 슬러지 내에 함유된 침적토의 실리카를 합하여 본다면 큰 차이는 없다고 볼 수 있다.

Table 9. 슬러지별 무기물 화학적 조성(wt.%)

성분	토양	콘크리트	농축 폐액	성프	부식성
Fe ₃ O ₄					24
Fe ₂ O ₃	4 - 9	5.61		24.05	52.3
NiO					15.9
Cr ₂ O ₃					8.3
CoO				0.78	0.3
Al ₂ O ₃	16-24	5.31	10.0	21.17	
SO ₂		2.00		2.29	
SiO ₂	50-65	21.03	13.0	38.65	
Other					
Al ₂ Si ₂ O ₅ (OH) ₄					
CaO		63.38	19.0	1.08	
TiO ₂			4.0	0.55	
B ₂ O ₃			30.0	0.032	
Na ₂ O		0.07	2.0	5.74	
K ₂ O	1-3			4.18	
MgO	0.6-2.5	2.60	9.0	1.83	
ZnO			13.0	0.24	
CuO				0.20	
MnO ₂					
합계	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0

1. 모의 폐기물 시료 제조

원전에서 발생하는 폐기물 중 처분부적합하면서 대표적인 폐기물을 조사하여 선정된 폐기물을 Table 10에 정리하였다. 농축 폐액 및 슬러지의 조성 등은 각종 문헌 등을 통하여 조사하여 모의 시료를 제조하였다 이를 위하여 각종 해당 시약을 물에 용해시키거나 물에 담가서 증발 건조기를 이용하여 460 °C 에서 2시간 동안 증발 건조해 해당 모의 폐기물 시료를 제조하였다. 그리고 토양과 콘크리트 파쇄물은 원전 주변이나 폐건물 해체장소에서 수집하여 분말의 균일한 입도 분류를 위하여 체(Sieve)를 이용하여 일정한 입도분포를 갖도록 하였다.

Table 10. 조건별 시료 선정 및 종류

구 분	종 류
수분의 영향 평가	벤토나이트
원전 운영 폐기물	농축 폐액, Sump 슬러지
원전 해체 폐기물	콘크리트, 토양
제염 폐기물	부식 슬러지

제조된 각 모의 폐기물 시료의 샘플은 Fig. 7과 같다.



Fig. 7. 제조된 모의 시료
 (좌측부터 벤토나이트, 토양, 콘크리트, 농축 폐액, Sump, 부식성 슬러지)

가. 벤토나이트

벤토나이트(Bentonite)는 고 팽창 점토 광물로 미국 와이오밍(Wyoming)주의 Fort Benton 광산에서 처음 유래되어 만들어진 이름이다. 지질학적으로 벤토나이트는 화산 물질의 하나로 백악기나 중생대 중기의 암모나이트와 공룡들이 서식했던 때부터 생성되었다. 대부분의 상업용 광물은 화산 암석 또는 화산재를 가수분해해서 형성되었으며, 남극을 제외한 모든 대륙에서 발견되고 있다. 국내에서 생산되는 벤토나이트는 대부분 Ca형 벤토나이트로서, 한반도 동남쪽 경주, 포항, 울산으로 연결되는 삼각지역 내에 분포하고 있으며, 주요 조성은 Table 11에 정리하여 나타냈다[13].

Table 11. 국내(경주) 벤토나이트 화학조성

구분	SiO ₂ (%)	Al ₂ O ₃ (%)	Fe ₂ O ₃ (%)	CaO (μ g/g)	MgO (%)	K ₂ O (%)	Na ₂ O (%)	FeO (%)	SO ₃ (%)	MnO (%)
함량	56.8	20.0	6.0	2.6	0.8	0.9	1.3	0.2	1.3	0.04

벤토나이트를 구성하는 주요 광물인 몬모릴로나이트(Montmorillonite)는 삼층 구조로 8면체의 알루미늄 수산기 층으로 이루어져 있으며, 두 층 사이에는 실리카와 산소의 4면체 구조로 되어 있다. 알루미늄 원자는 부분적으로 마그네슘 또는 철 원자로 대체될 수 있는데, 이러한 결과로 실리카 4면체 층에 발생한 음이온과 층간 사이에서 양이온의 흡수로 균형을 이루게 된다. 이러한 특징으로 인하여 벤토나이트는 물이나 습도가 높은 공기와 접촉하면, 물이나 수증기가 벤토나이트 내로 침투하여 몬모릴로나이트 기본 층 사이의 거리를 증가시키기 때문에, 수착(Sorption)현상 이후 습윤 상태에 있는 벤토나이트는 건조 상태일 때보다 부피가 많이 증가하는 팽윤 현상(Swelling)이 발생한다[14].

분말의 펠렛 성형에서 수분이 펠렛에 미치는 영향에 대한 반응을 확인하고자 본 연구에서는 뒷채움재로 사용되고 있는 벤토나이트를 모의 시료로 선정하였으며, 실험에 사용된 벤토나이트는 국내에서 생산된 일성케미컬사(社) 벤토나이트를 이용하였다.

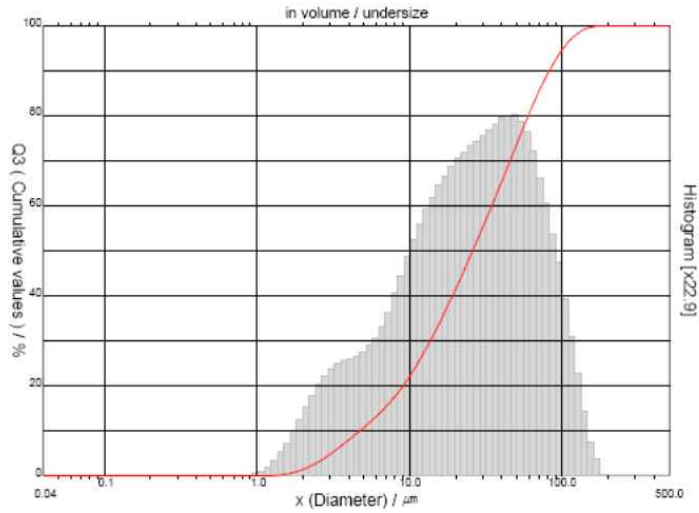


Fig. 8. 벤토나이트(일성케미컬) 입도 분포도

나. 토양

원전의 해체 시 제염작업으로 인하여 오염된 토양이나, 제염이 불가능한 미립자 크기의 분말들의 발생을 고려하여 토양을 모의 시료로 선정하여 모의 시료를 제조하였다. 본 연구에 사용된 토양은 고리 발전소 인근 원전 부지 주변의 토양을 사용하였으며, 수집된 토양의 입도분포와 SEM 사진을 각각 Fig. 9, Fig. 10에 각각 나타냈다.

국내의 34곳에서 적갈색 토양을 채취하여 분석한 사례를 조사하여 국내의 토양을 구성하는 화학성분을 Table 12에 정리하였다[15]. 인용된 논문에서 적갈색 토양의 경우, 황토보다 Al_2O_3 , Fe_2O_3 , H_2O 가 많지만, CaO , MgO , K_2O , Na_2O 가 다소 적게 함유되어 있으며, 입도 분석에서 적갈색 토양의 모래(Sand)는 15 ~ 40 %, 실트(Silt)는 20 ~ 50 %, 점토(Clay)는 30 ~ 60 %이고 황갈색 토양의 모래(Sand)는 40 ~ 80 %, 실트(Silt)는 10 ~ 30 %, 점토(Clay)는 10 ~ 40 % 라고 제시하고 있다.

Table 12. 토양의 무기물 화학적 조성(wt.%)

항목	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	MgO	K_2O	H_2O	기타 ³⁾
함유율 (%)	50 - 65	16 - 24	4 - 9	0.6 - 2.5	1 - 3	5 - 15	10 ppm 이상

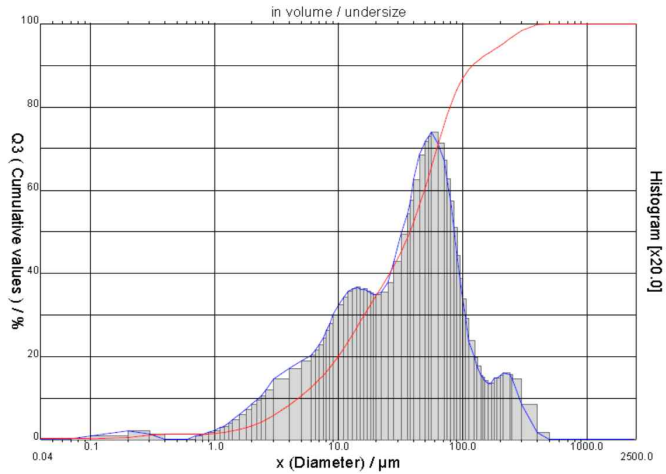


Fig. 9. 토양의 입도 분포도

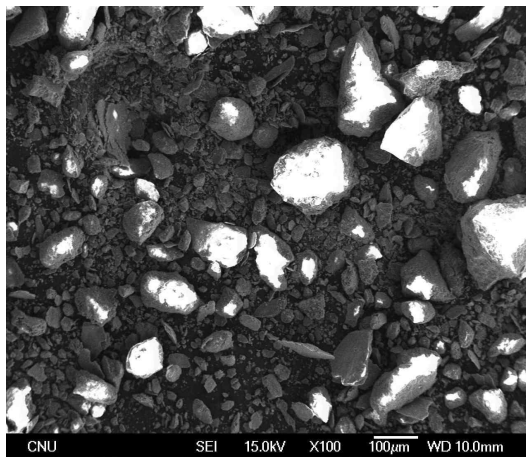


Fig. 10. 토양의 SEM 사진

다. 콘크리트

콘크리트 슬러지나 시멘트 슬러지들은 주로 시설의 해체과정이나 방사성 관리구역의 건물 보수작업 과정에서 발생하며, 일부는 제염 과정에서도 발생할 수가 있다. 시멘트 슬러지는 시멘트를 조성하는 모르타르(Mortar) 성분만으로 구성된 반면에 콘크리트 슬

3) Co, Ni, Cu, Rb, Y, Nb, Cs, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Dy, Pb 등

러지는 시멘트 모르타르에 첨가제로 모래나 조악한 자갈들이 포함되어 있기 때문에 콘크리트 슬러지와 시멘트 슬러지는 엄밀하게 구분하여야 한다.

Table 13에 시중에 판매되는 포틀랜드 1형 시멘트의 화학적 조성을 조사하여 나타내었으며, 본 연구에서는 폐건물 해체과정에서 발생한 콘크리트 폐기물을 사용하였으며, Fig. 11과 12에 체(Sieve)로 거른 콘크리트 파쇄물의 입도 분포와 SEM 사진을 각각 나타냈다.

Table 13. 국내 시판중인 포틀랜드 시멘트의 조성 (wt.%)

항목	CaO	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	MgO	Na ₂ O	SO ₃	Ig. Loss	합계
쌍용	62	22	6	3	3	0.2	2	1.2	99.4
동양	63	21	6	3	3	0.1	2	1.5	99.6
한일	63	21	5	6	3	0.1	2	1.1	101.2
성신	63	21	6	3	3	0.1	2	1.0	99.1
현대	62	21	6	3	3	1	2	1.1	99.1
아세아	62	22	6	3	0.1	1	2	1.4	97.5

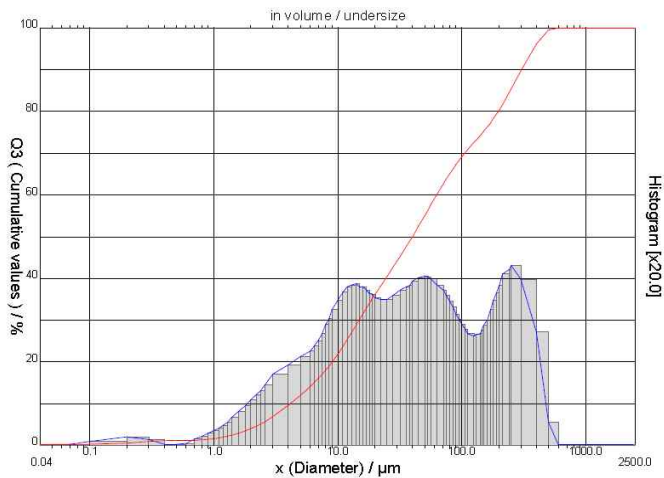


Fig. 11. 콘크리트의 입도 분포도

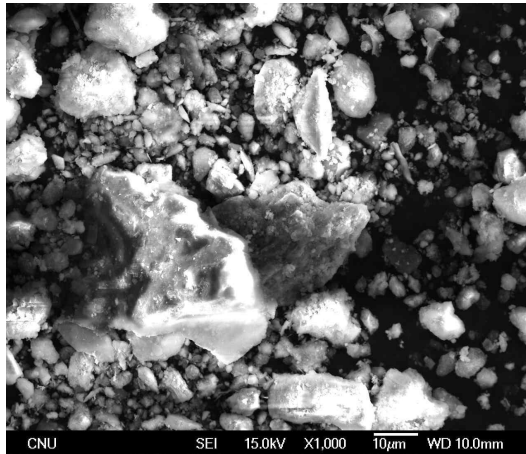


Fig. 12. 콘크리트의 SEM 사진

라. 농축 폐액

일반적으로 국내에서 운전 중인 가압경수로(PWR)에서는 반응도 제어용으로 붕소를 사용하고 있기 때문에 폐액 중에는 상당량의 붕산이 함유되어 있다[16]. 국내 원전에서 발생하는 액상의 방사성폐기물은 초기에는 증발기에 의해 증발 처리되었으나, 현재, 붕산함유 폐액은 농축 폐액 건조설비(Concentrate Waste Drying System,)인 CWDS에 의하여 증발, 농축 및 건조 과정을 통해 분말 상태로 건조하고 있고, CTS에 의해서는 붕산폐액은 과립물 상태로 건조되고 있다. 그러나 CWDS에 의하여 건조되어 생성된 과립물들은 그의 입도 분포가 매우 넓은 수 μm ~ 수십 mm의 다양한 크기와 형태로 존재한다.

Table 14. 농축 폐액의 화학적 조성 (wt.%)

구분	Na (%)	Si (%)	B ($\mu\text{g/g}$)	Ti (%)	Zn (%)	Al (%)	Ca (%)	Mg (%)
함량	4	13	30	4	13	10	19	7

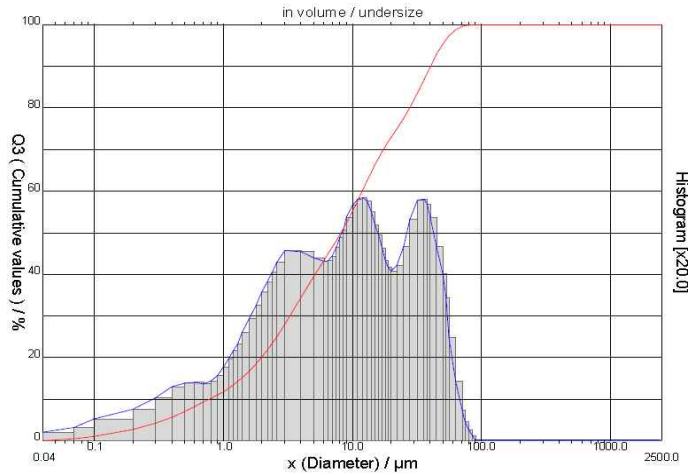


Fig. 13. 농축 폐액 슬러지의 입도 분포도

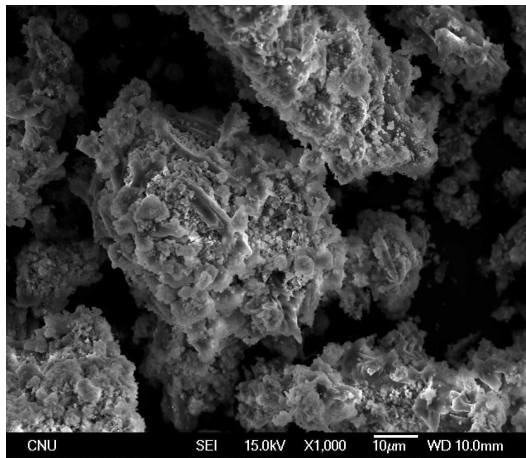


Fig. 14. 농축 폐액 슬러지의 SEM 사진

마. Sump 슬러지

Sump 슬러지는 일반적으로 액체 방사성폐기물 저장탱크의 누수, 방사성 구역의 바닥이나 벽면의 제염 과정 또는 일부 장치의 표면제염 등의 작업에 의해 발생하여 건물 바닥 밑에 설치된 Sump 내로 유입된 슬러지를 일컫는다.

“원전 집수조 발생슬러지 처리연구”에 따르면 영광 1발의 재포장 드럼(H940 x D660 (mm), 82 gal)에 포장된 Sump 슬러지에 대한 물리 화학적 조성 등이 기술되어 있

는데, 이 슬러지는 Sump 슬러지로서 재포장 드럼 부피의 2/3은 슬러지, 1/3은 물과 기름으로 구성된 것으로 조사되었으며[17], 이 논문에 기술된 Sump 슬러지에 대한 물리 화학적 특성은 Table 15와 같이 보고되어 있다.

Table 15. Sump Sludge의 물리화학적 특성

구분	수분, %	pH	밀도, g/ml	유분, %	비고
함량	41	8.4	1.3	3.1	유분은 상등액

위 Sump Sludge에 대한 화학적 조성을 Table 16에 나타냈다.

Table 16. Sump Sludge의 화학적 조성

구분 (단위)	Fe (%)	Ti (%)	S (%)	B ($\mu\text{g/g}$)	Na (%)	K (%)	Si (%)	Mg (%)	Ca (%)	Al (%)	Zn (%)	Cu (%)
함량	10.66	0.42	1.6	63	2.7	2.2	22.9	1.4	0.98	7.1	0.24	0.2

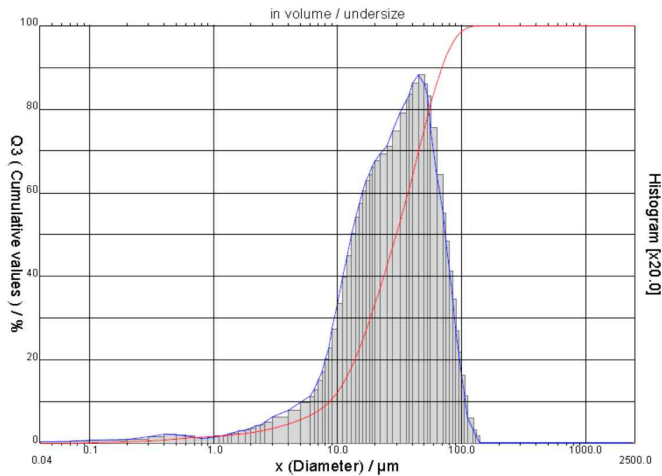


Fig. 15. Sump 슬러지의 입도 분포도

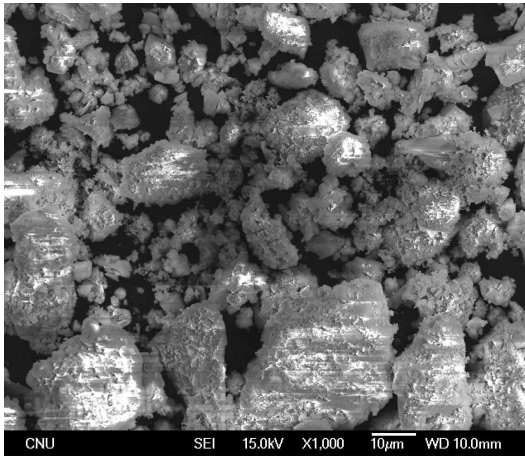


Fig. 16. Sump 슬러지의 SEM 사진

바. 부식 슬러지

부식성 슬러지는 일반적으로 배관, 증기발생기 등이 1차 냉각수와 접촉하여 방사화된 철제 재료의 금속이 방사화되어 이들로 부터 이탈되어 제거된 방사화된 폐기물이다. 이들은 1차 냉각수의 정제과정이나 증기발생기의 제염 과정에서 발생한 제염 폐액 내에 존재하게 된다(Table 17 참조). 현재 원전의 유기성 슬러지도 넓은 의미에서 부식성 슬러지로 분류할 수 있다고 생각된다.

Fig. 17과 18에 본 연구를 위하여 Table 17을 근거로 제조된 부식 슬러지의 입도 분포와 SEM 사진을 나타냈다.

Table 17. 부식성 슬러지의 화학적 조성

항목	material	composition	함량 (wt%)	비고
부식성 슬러지	Corrosion Products	Fe ₃ O ₄	24	○ 슬러지 내 수분함량 : 80 wt.% ○ 입자 크기 : 1µm 이하
		Fe ₂ O ₃	52.3	
		N ₂ O	15.9	
		Cr ₂ O ₃	8.3	
		CoO	0.3	

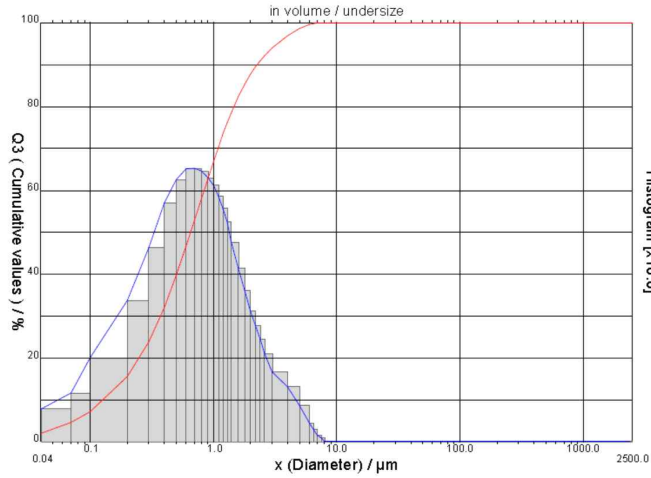


Fig. 17. 부식 슬러지의 입도 분포도

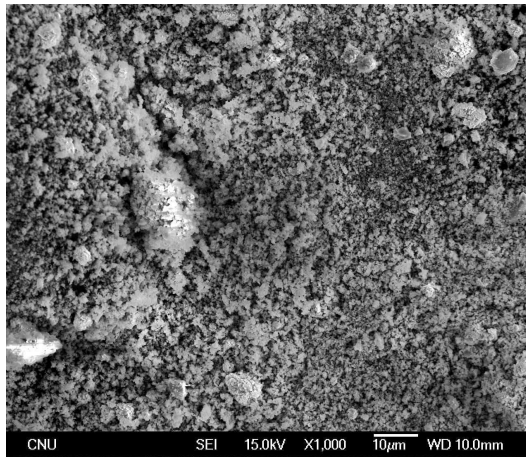


Fig. 18. 부식 슬러지의 SEM 사진

제3절 모의 폐기물 시료의 펠렛 성형실험

1. 분말의 펠렛성형 실험 장치의 구성

연구 대상인 여러 종류의 분말 상태의 모의 폐기물 시료를 일정 크기와 모양을 갖는 펠렛으로 성형하기 위한 실험 장치를 Fig. 19, 20과 같이 구성하였다. 또한 실험

장치의 운전 이외에 물질의 감용화를 위한 펠렛 성형, 성형된 펠렛의 고화처리를 위하여 부피감용 및 성형된 펠렛의 건전성 확보를 고려하여 아래 사항들을 충족시키는 시스템으로 구축되도록 하였다.

- 성형응집 제재를 사용하지 않으면서 건조 분말의 성형 가능성
- 성형된 펠렛의 크기 균일성 유지 여부
- 고밀도의 펠렛 성형 가능성(고감용화)
- 설치 및 유지보수가 용이한 크기 및 구조에 대한 제작 가능성
- 펠렛화 전·후 처리용 부대 장치가 필요하지 않은 조건 등

구축된 펠렛 성형실험 장치의 주요 구성 장치 및 그들의 기능들은 아래와 같다.

- Roll Tire
원료를 직접 성형하는 Roll이며 2 개가 한 쌍으로 이루어져 있으며 롤 표면에 는 일정한 형상의 Pocket이 가공되어 Pocket 형상으로 원료가 성형되는 부분.
- Drive Unit
Roll Tire를 구동하는 장치로 Roll Shaft, Bearing Part, 감속기, Motor 등으로 구성되며. 인버터로 회전속도를 조절할 수 있다.
- Screw Feeder
원료의 공급을 원활하게 하며 원료를 가압하여 분말의 성형성을 향상하기 위한 장치로 헬리컬 웜 감속기 및 구동 motor, Screw Shaft, bin 등으로 구성되며, 인버터를 사용하여 회전속도를 변화시킬 수 있다.
- Hyd' Unit 및 Cylinder
분말을 펠렛으로 성형 시 원료에 따른 다양한 압력을 유지하기 위한 Hyd' Unit 및 유압실린더로 구성되어 있으며. 선압은 최대 15 ton/cm까지 가압할 수 있다.
- Product Box
기계에서 성형된 성형품을 담을 수 있도록 제작된 BOX이다.
- Control Panel
장치를 조작하는 Panel로써 Roll Tire 회전속도, Screw Feeder 회전속도, Tire 압력을 확인하며, 조절할 수 있다.

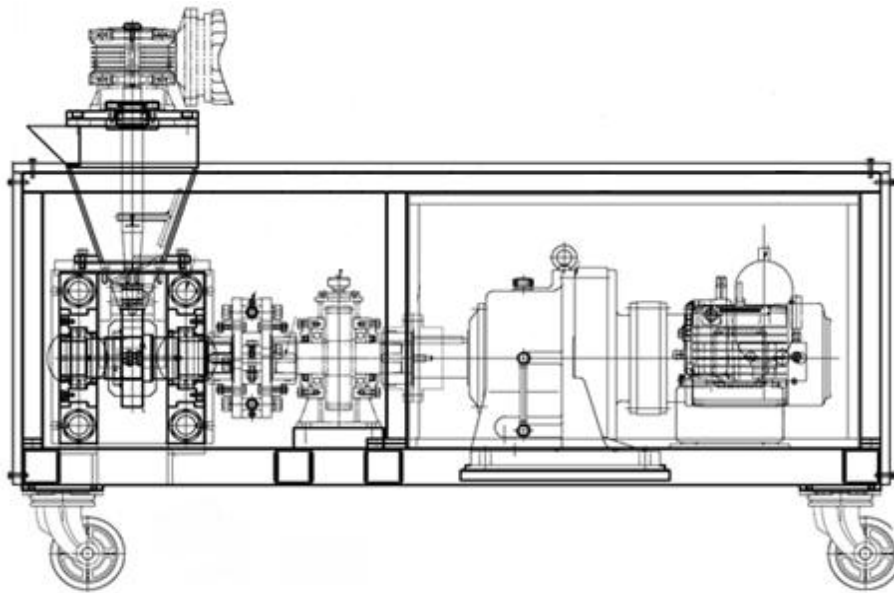


Fig. 19. 펠릿성형장치의 개념도

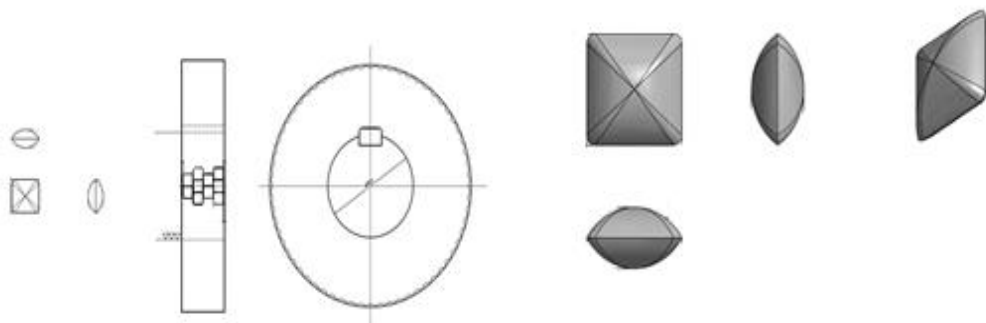


Fig. 20. 펠릿성형장치의 롤 포켓 설계 (사각형) 및 사각형 펠릿



Fig. 21. 펠릿성형장치 (측면)

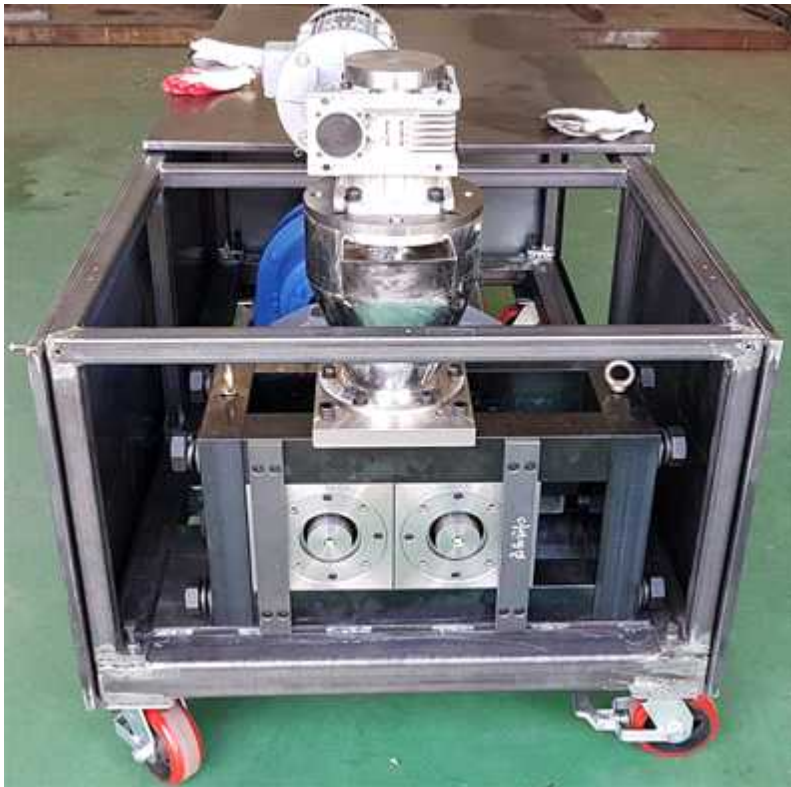


Fig. 22. 펠릿성형장치 (정면)



Fig. 23. 펠릿성형장치의 롤 포켓 (측면, 정면)

위의 조건과 앞 장에서 기술된 Johanson 컴팩션 모델을 검토하여 구축된 펠릿성형 실험 장치의 기술사항을 Table 18에 나타냈다.

Table 18. Process Parameters and Conditions in Roller Compaction

Process parameters		Process conditions	
Effective angle of friction	42°	Roll gap	3 mm
Radius of the rollers	21.5 cm	Hydraulic pressure	300 kgf/cm ²
Compact surface area	360 cm ²	Roll speed	30 rpm
Roll width	6.5 cm	Feed speed	35 rpm
Roll pockets:			
- Length	0.95 cm		
- Height	0.9 cm		

또한 서로 반대 방향으로 회전하면서 두 롤이 만나는 영역으로 분말 시료가 주입되는데, 분말 시료의 공급이 과잉이거나, 성형 압축력이 주입된 분말을 성형시키는데 필요한 압력보다 낮을 경우에는 두 개의 롤 사이의 간격은 벌어지게 되는데 이를 롤 갭(Roll gap)이라 한다. 롤 갭이 커지면 주입된 분말 시료의 성형성은 불량해지고 이에 따라 분말의 펠릿 성형에 의한 감용비는 저하하게 된다. 따라서 이 롤 갭의 정도를 측정하기 위하여 Fig. 24와 같이 롤 갭 측정장치를 설치하였다. 단순히 LVDT(Linear Variable Displacement Transducer)만으로도 롤 갭 측정이 가능하지만 정확하게 측정하기 위하여 인코더(Encoder)를 추가하였다.

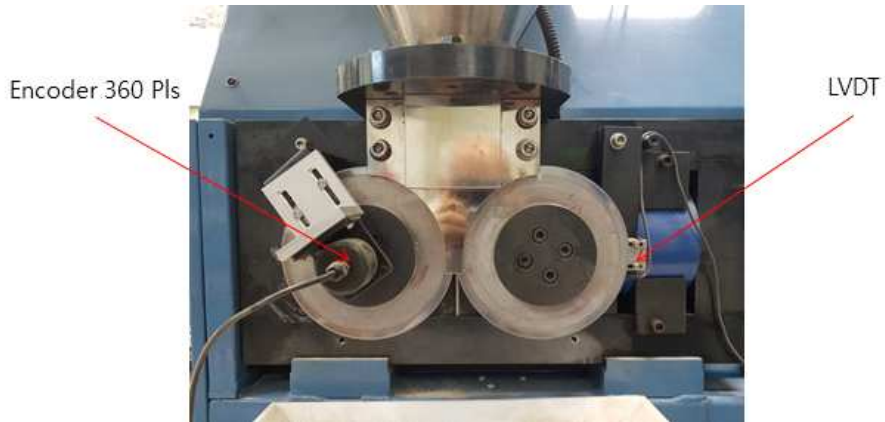


Fig. 24. Roll gap 측정을 위한 장치

2. 모의 폐기물 시료의 압축성 평가실험

일반적으로 일축 압축기를 이용하여 물질(금속, 세라믹, 제약품, 식품 등)의 특성에 대한 사전 조사 및 기계적 특성을 규명하게 되는데, 이 방법은 Fig. 25와 같이 분말을 두 개의 펀치와 한 개의 원통형 스테인리스 압축기에 국한해, 이들을 고정테이블에 올려놓고, 하단의 펀치는 움직이지 않도록 하면서 일정한 속도로 위쪽의 펀치에만 가하여 가해진 압력-부피 관계, 압축 인자 및 마찰 특성 등을 도출하게 된다.

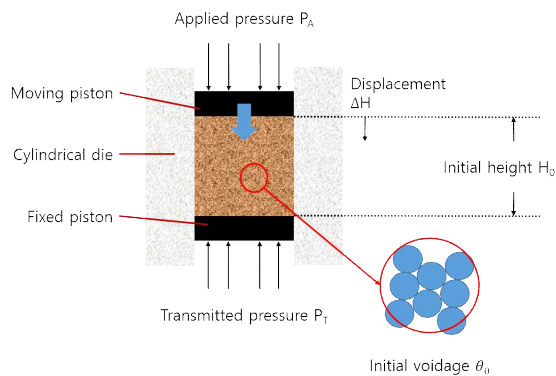


Fig. 25. Experiment by using an uniaxial die compaction

여기서 압축성은 가해진 압력에 의해서 부피가 감소하는 정도로 정의될 수 있는데 보통 압축성을 나타내는 K로 표현하게 된다(Fig. 26).

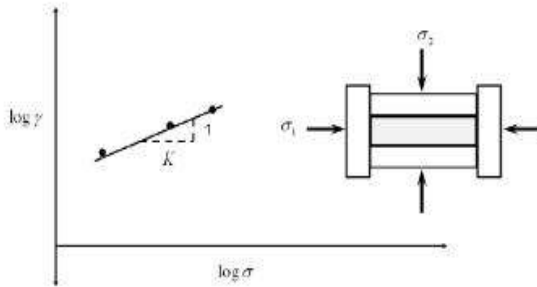


Fig. 26. Determination of compressibility

이 값은 가해진 압력과 겉보기 밀도의 관계로부터 아래 식과 같이 실험적으로 얻어진다.

$$\frac{\sigma_1}{\sigma_2} = \left(\frac{\rho_1}{\rho_2} \right)^K \quad (12)$$

여기서, σ_1 와 σ_2 는 각각 최대 및 최소 압력이며, ρ_1 과 ρ_2 는 각각 최대 및 최소 압력에 해당하는 물질의 겉보기 밀도이다.

3. 모의 폐기물 시료의 성형 펠릿 평가실험

펠릿 성형 장치에 의하여 펠릿으로 성형된 모의 폐기물 펠릿의 성형 정도를 평가하는 항목은 펠릿의 강도와 모의 시료 분말의 성형도(감용화 정도) 일 것이다.

성형 펠릿의 강도 측정에는 시험 시편의 상·하면이 평행하여야 하고, 방폐물 처분장의 인수기준에서 기술된 압축강도 측정시험법을 적용하기에는 제조된 성형 펠릿 시편의 크기가 매우 작다. 한국원자력환경공단에서 제시하고 있는 압축강도 측정시험은 KS F 2405(경질고화체)에 의하여 수행하도록 제시하고 있는데, 이 시험법은 ISO 4012 시험법과 동일하며, ISO 시험법은 ASTM C39를 모태로 하고 있다. 따라서 ASTM C39로

압축강도 측정을 하였으며, 유압식이 아닌 나선식으로 재하속도>Loading rate)는 시편
 높이(1 mm)를 기준으로 하여 1 mm 당 0.05 mm/min 으로 측정하도록 하였다.



Fig. 27. 성형 펠릿 평가를 위한 지그와 강도 측정용 시편

본 연구의 목적은 모의 폐기물 시료의 감용화에 있으므로 성형 펠릿의 감용 정도는
 성형된 펠릿의 무게와 부피를 측정하여 그에 부피에 해당하는 분말의 무게를 측정하여
 $\text{감용 정도} = \text{성형 펠릿 무게} / \text{분말 무게}$ 의 비율로 평가하도록 하였다.

제4절 성형 펠릿의 결과 및 고찰

1. 모의 폐기물 시료의 압축성 실험 결과 및 고찰

슬러지별 분말 입자를 Fig. 28의 일축 압축기(용량 20톤)의 원통형(cylindrical stainl
 ess steel die) 내에 자유스럽게 낙하시켜 주입한 후에 일축 압축하였다.

각 슬러지별 분말에 가해진 힘은 13.5 톤(13,460 kgf)으로 일정하게 하였으며, 일축
 압축기의 원통 홀의 직경은 20 mm, 높이는 53 mm이므로 이며, 그의 부피는 16.642
 cm³이었다.



Fig. 28. 일축 압축을 위한 시험장치 및 압축 다이

13.5 톤의 힘으로 각 슬러지를 압축한 결과를 Table 19에 나타냈으며, 압축하여 얻은 원통형 압축 분말체의 형상을 Fig. 29에 나타냈다.

Table 19와 Fig. 29에서 보듯이 모든 슬러지가 압축이 가능한 시료임을 알았지만, 일축 압축은 면압에 의한 압축이기 때문에 선압(롤 컴팩션)에 의해 압축이 가능한지는 판단하기는 어렵다. 여하튼 벤토나이트가 가장 압축성이 높은 것으로 나타났으며, 모든 슬러지들은 초기부피의 1/2 이상으로 압축되었다.

벤토나이트의 경우, 겉보기 밀도가 다른 슬러지에 비하여 낮고, 압축된 부피가 작은 것으로 보아 압축하기 전의 분말 사이에 공극이 많았던 것으로 보인다. 이는 압축을 위한 원통형에 분말을 자유 낙하시켜 주입함에 따라 분말 입자들 사이사이에 상대적으로 공극을 많이 형성하였기 때문일 것으로 예측되었다.



Fig. 29. 일축 압축을 이용한 시료의 압축 평가
(좌측부터 벤토나이트, 토양, 콘크리트, 농축 폐액, Sump 슬러지, 부식 슬러지)

Table 19. 시료 종류별 사전 압축성 평가 결과

시료 종류	수분 함유율 (%)	시료 상태	무게 (g)	높이 (cm)	압축 전후의 부피 (cm ³)	밀도 (g/cm ³)	압축성 (%)
벤토나이트	10	분말	12.8	5.3	16.6	0.8	294
		일축 압축		1.8	5.7	2.3	
토양	3	분말	20.5	5.3	16.6	1.2	233
		일축 압축		2.3	7.2	2.9	
콘크리트	7	분말	16.8	5.3	16.6	1.0	220
		일축 압축		2.4	7.6	2.2	
농축 폐액	9	분말	12.6	5.3	16.6	0.8	237
		일축 압축		2.2	7.0	1.8	
성프 슬러지	5	분말	18.9	5.3	16.6	1.1	208
		일축 압축		2.6	8.0	2.7	
부식 슬러지	7	분말	28	5.3	16.6	1.7	212
		일축 압축		2.5	7.8	3.5	

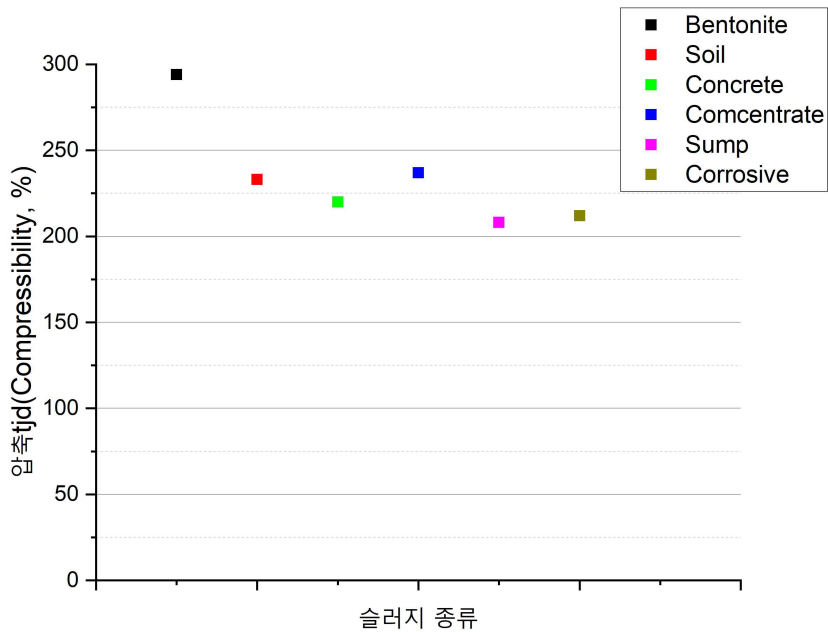


Fig. 30. 슬러지 종류별 압축성

2. 펠렛의 성형을 위한 실험 장치의 운전변수 평가

펠렛의 성형을 위한 실험 장치의 운전변수 평가를 위한 실험에서는 분말 재료로 벤토나이트 분말을 사용하였다. 이는 분말들의 압축성 평가실험에서 벤토나이트가 타 분말 시료보다 압축 정도가 매우 양호하였기 때문이었다.

가. 롤 포켓(Roll pocket)의 성형 압력(Hydraulic)

롤 컴팩션은 일정한 면적을 갖고 압축하는 방식과는 달리 두 개의 롤 사이의 접촉면에서 분말을 압축하여 성형하는 방식이다. 이때 펠렛 성형용 포켓이 가공된 2 개의 롤에 가해지는 압력은 분말이 포켓 내에서 성형되는데 필요한 절대적인 요소이다. 본 실험에서는 벤토나이트 분말의 펠렛 성형을 위하여 분말의 공급 속도와 롤 회전속도를 일정하게 고정하고 성형압축력을 변화시키면서 성형된 분말의 질량 변화를 Fig. 31에 나타내었다.

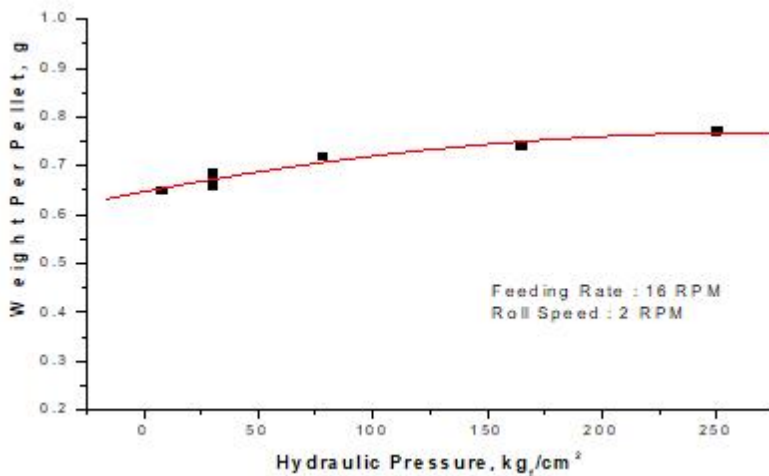


Fig. 31. 성형 압축력에 따른 성형된 펠렛의 질량 변화

Fig. 31에서 보듯이 성형 압축력이 향상할수록 펠렛의 질량도 증가함을 알 수 있었는데, 이 성형조건 하에서 펠렛 당 무게는 0.64 g에서 0.78 g로 증가하였다. 롤 포켓 내에 분말의 공급량을 극대화한 상태에서 롤 간격은 증가하지만 이를 압축할 수 있는

성형 압축력이 더욱 가해진다면 펠렛 단위당 분말 무게는 최대가 될 것이며, 강도 또한 최대가 되리라 판단된다.

나. 롤의 회전속도(Roll speed)

롤의 회전속도는 단위 시간당 분말의 펠렛 성형 처리량과 매우 밀접한 관계를 맺고 있다. 롤의 회전속도가 증가하면 증가할수록 공급된 양이 많게 되면 두 개의 롤 사이의 거리는 벌어지게 되어 성형된 펠렛의 강도는 약해질 수 있다. 두 개의 롤 사이의 거리를 일정하게 유지하면서 롤의 회전속도를 증가시키면 성형되는 펠렛의 무게와 강도는 분말의 특성에 크게 의존하게 된다. 즉, 점착성의 분말은 강도가 기대되지만 비압축성 분말인 경우에는 기대되지 못한다.

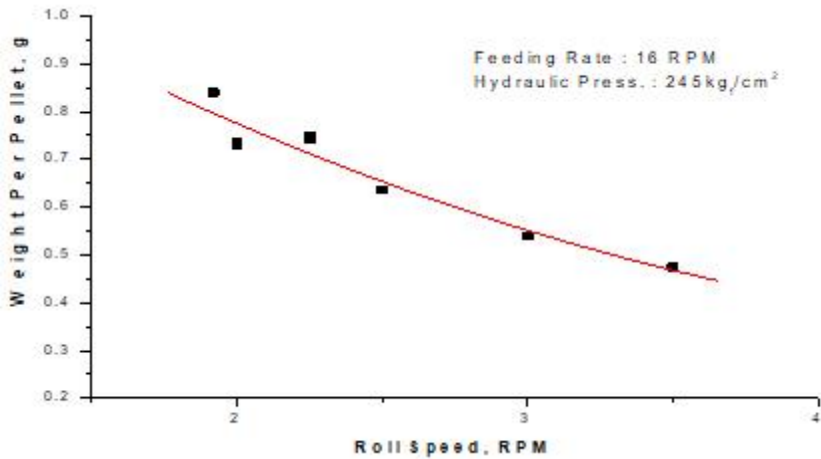


Fig. 32. 롤 회전속도에 따른 성형된 펠렛의 질량 변화

Fig 32는 분말의 공급 속도와 성형 압축력을 일정하게 유지하면서 롤의 회전속도 변화에 따른 성형 펠렛의 질량 변화를 나타내고 있다. Fig 32에서 보듯이 두 개의 롤 간격 내로 주입되는 분말의 양은 일정하지만, 롤의 회전속도는 빨라서 실제로 롤 포켓 내로 주입되는 분말의 양은 적게 되기 때문에 성형된 펠렛의 무게는 작아지게 됨을 알 수가 있었다.

다. 분말 주입속도(Feeding rate)

분말의 주입 속도 또는 롤 포켓 내로 주입량이 과잉 공급될 경우에는 서로 반대 방향으로 회전하는 롤의 맞물림에 영향을 주게 된다. 궁극적으로 일종의 간극(Backlash)으로 인하여 펠렛의 위상차이(Phase difference)가 발생하게 되면 양호한 모양의 펠렛이 성형되지 못하게 된다. 따라서 간극에 의한 두 롤의 원점 수정을 위한 장치의 유지보수 배제와 롤 포켓 내로의 주입량이 최적화된 상태에서 분말의 고감용화, 즉 펠렛의 밀도와 강도 증가를 위해서 분말의 공급 속도에 대한 조절이 필요하다.

일정한 롤 회전속도와 성형 압축력을 고정한 상태에서 분말의 공급 속도를 변화시키며 펠렛의 무게 변화를 Fig. 33에 나타내었다. 일정한 롤 회전속도에서 롤 포켓에 주입되는 양은 분말 공급 속도에 따라 달라지는데 분말의 공급 속도가 증가할수록 펠렛의 무게는 증가하였다. 그러나 분말의 공급량이 일정량 이상으로 공급하게 될 때는 롤을 회전시키는 모터의 힘이 부족하여 롤의 회전이 펠렛 형태에 위상차이가 발생하기도 하였다.

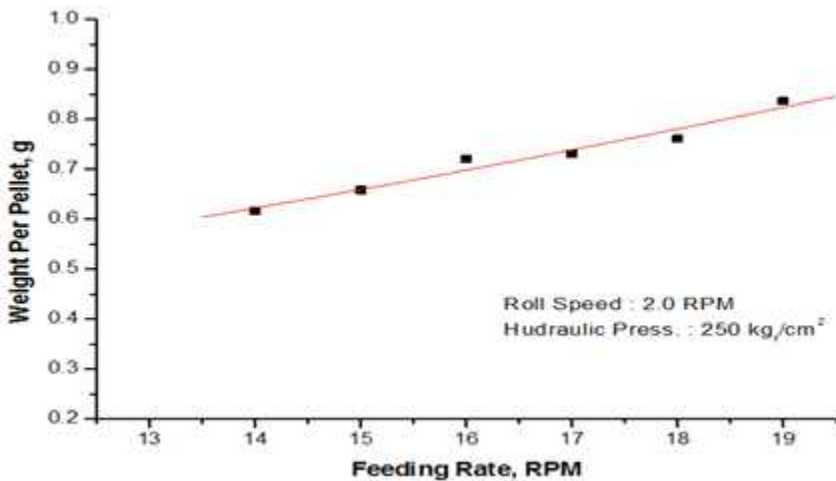


Fig. 33. 분말 주입속도에 따른 성형 펠렛의 질량 변화

라. 롤 간격(Gap distance)

성형과정에서 롤에 가하는 압력을 변화시키면서 측정한 롤 간격의 결과를 Fig. 34에

제시하였다. 압력을 가하지 않은 상태에서는 분말이 2개의 롤 사이에 공급되면서 분말이 펠렛으로 성형될 때 포켓 내로 주입된 분말을 압축하는 힘이 적게 되어 두 개의 롤 사이의 거리(간격)는 벌어졌으며 성형된 펠렛의 압축 상태는 매우 불량하게 되었으며, 펠렛의 강도는 매우 낮았다. 반대로 압력을 서서히 변화시키면서 가하게 되면 두 개의 롤 사이의 거리는 점차 좁아지면서 펠렛의 압축상태는 매우 양호하게 되는 것을 알 수 있었다.

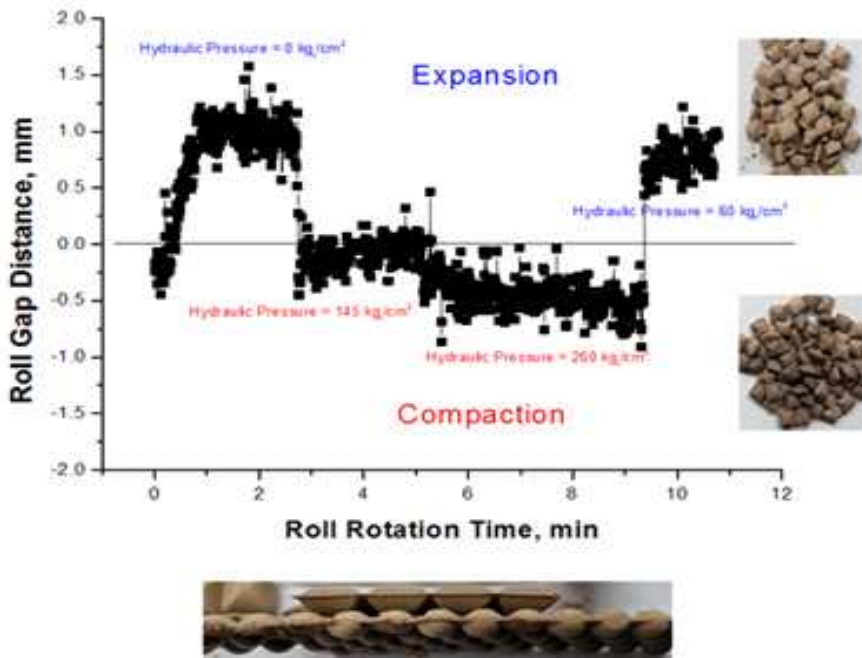


Fig. 34. 롤 간격의 변화에 따른 펠렛의 성형 조건

한편 롤 갭은 폐기물의 감용화와 매우 밀접한 관계가 있으므로 콘크리트 분말을 성형하는 과정에서 롤 갭을 측정 한 결과를 Fig. 35와 36에 나타냈다. Fig. 35와 36에서 보듯이 두 개의 롤이 회전하면서 일정한 성형 압축력 하에서는 롤 내로 주입되는 분말 양 및 롤 속도가 증가하여도 롤 갭에는 $-0.6 \sim +1.6$ mm 내에서 크게 영향을 미치지 않음을 확인할 수 있었다.

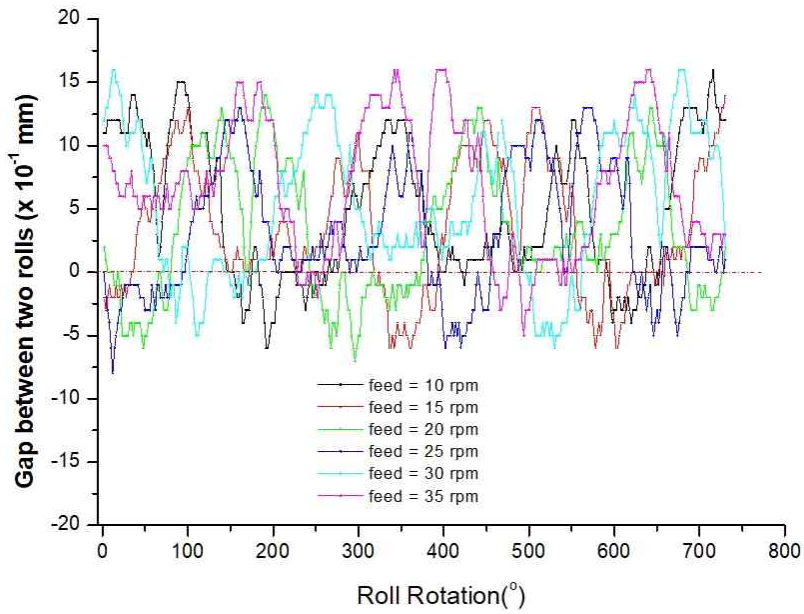


Fig. 35. 분말 공급 속도 변화에 따른 두 롤 간의 간격

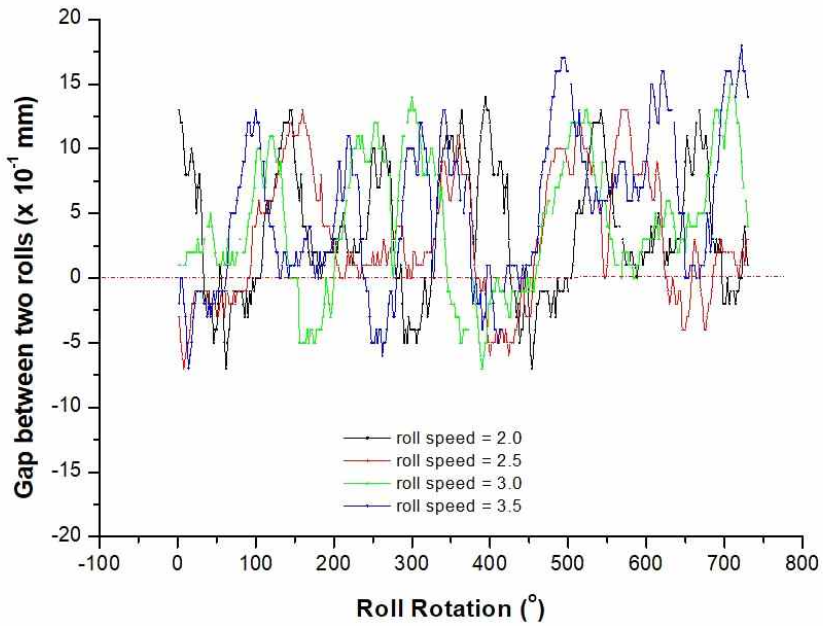


Fig. 36. 롤 회전속도 변화에 따른 두 롤 간의 간격

3. 모의 폐기물 시료의 성형 펠릿에 대한 평가

를 컴팩션에 의해 성형된 펠릿들을 Fig. 37에 나타냈다.



Fig. 37. 모의 폐기물로부터 성형된 펠릿

이어서 성형 펠릿에 대하여 압축강도 측정을 수행하여 얻은 결과를 Table 20에 나타냈으며, 생성된 펠릿의 압축강도는 5.2 ~ 28.2 MPa를 가지고 있었다. 처분장 인수 조건에서 제시하고 있는 3.44 MPa를 만족하였는데, 성형된 분말을 폴리머가 아닌 다른 고화 매질을 이용하여 고화체를 제조하여도 처분조건을 만족한다는 의미로 해석할 수도 있다고 판단된다.

Table 20. 운전변수에 따른 펠릿 압축강도

성형 조건	펠릿 크기	펠릿의 압축강도 (MPa)	
		콘크리트	토양
Roll speed	9.45 mm	15.3	11.4
		12.0	10.8
		7.7	5.2
Feeding rate		28.2	19.7
		17.0	13.1
		24.4	8.5

제4장 처분부적합 방사성폐기물의 폴리머 고화

제1절 처분부적합 방사성폐기물의 고화

1. 방사성폐기물 고화 기술의 현황

원자력 관련 시설에서 발생하는 모든 방사성폐기물은 임시저장, 이송 등의 단기 관리기간 동안 방사성핵종이 누설되거나 분산되어 인간생활권이나 자연환경을 오염시켜서는 아니 된다. 또한 이때 방사성폐기물을 취급하는 작업종사자들은 방사성 폐기물로부터 나오는 방사선에 피폭이 될 수도 있다.

따라서 이를 방지하고자 방사성폐기물을 다양한 고화 매질(시멘트, 아스팔트 및 폴리머 등)로 고형화하여 중앙 집중 관리할 필요가 있다. 즉, 방사성폐기물은 단단한 고체 덩어리(Monolith) 형태의 고화체로 전환하여 처분장(Repository)에서 약 300년간 집중적으로 관리가 이루어진다. 이들 고화체는 취급, 이송, 임시저장 및 처분과정을 거치는 동안 임시저장고나 처분장에서 구조적 안정성(Integrity)을 유지하여야 하며, 고화체로부터 액체가 빠져나와 드럼이나 기타 구조물을 부식시킬 가능성이 있는 고화체를 둘러싼 유리수(Free standing liquid)가 없어야 한다. 또한 처분장에서 접촉하게 되는 지하수에 의해 방사성 핵종이 누출되어 처분장 주위로 확산하지 않도록 고화체의 내침출성이 양호하여야 한다. 이러한 이유로 처분장을 운영하는 국가에서는 처분장에 인도되는 방사성폐기물 포장물에 대한 규정을 설정하게 되며, 처분장에서는 처분환경과 처분 성능목표(Performance Objective)를 달성하기 위하여 처분장 자체의 방사성폐기물 인수기준(Waste Acceptance Criteria)을 설정하고 있다.

이들 국가 규정 및 처분기준들은 처분장의 운영과 관리, 처분시설의 안전성 확보를 위하여 크게 고화체의 구조적(기계적) 건전성, 방사성 핵종의 선원항(Source term, Leachability), 핵종별 방사능량 및 총 방사능량, 그리고 방사성폐기물 및 고화포장물의 물리 화학적 특성 등으로 나누어 각각 세부적으로 규정하게 된다.

2. 기존 고화 공정의 문제점

방사성폐기물의 포장을 위해 사용하는 고화 기술의 가장 큰 장점은 폐기물과 고화 매질을 혼합하여 고화체로 경화되는 과정에서 부피가 증가하는 문제점이 발생한다. 시멘트 고형화의 경우, 고화 매질인 시멘트가 수화반응을 일으키면 체적이 증가해서 수화생성물이 입자 사이의 공극을 채우게 되며, 이때 수화정도과 물/시멘트 비율에 따라 공극률이 달라지는데, 물과 시멘트에 대한 비율이 증가함에 따라 공극률도 커지고 고화체 내의 중금속 용출 시 통로 역할을 하여 용출량을 증가시킨다. 폐기물과 시멘트 비율의 경우, 폐기물의 비율이 증가하면 시멘트의 총 중금속량이 증가하게 되며, 증가한 폐기물량만큼 고화 매질인 시멘트의 양이 줄어들어 수화를 일으킬 수 있는 물질이 줄어들어 강도가 저하되고, 중금속의 용출량이 증가하게 된다.

아스팔트를 고화 매질로 사용하는 경우, 100 °C 이상의 아스팔트를 이용하기 때문에 작업자들의 어려움이 발생하며, 시멘트보다 상대적으로 높은 감용비와 낮은 침출율을 얻을 수 있지만, 무엇보다 용점이 낮고 기계적 강도가 낮다는 단점이 있다. 또한 물과 접촉 시 팽윤 현상이 발생하는 가장 큰 문제점을 가지고 있다.

3. 기존 고화 공정의 문제점 해결을 위한 접근방안

1985년 일본에서는 Na_2SO_4 를 주성분으로 하는 농축 액체 폐기물과 이온교환수지 분말의 슬러리, BWR에서 발생하는 주요 폐기물을 건조 및 분쇄하여 방사성폐기물의 양을 줄이는 방법으로 수분을 제거하여 생성된 분말을 펠렛화 하는 연구를 진행하였다.

고형화의 건전성을 향상하기 위하여 수분을 제거하기 위해 고화 매질인 시멘트에 알칼리실리케이트 용액을 경화제로 첨가하여 알칼리 실리케이트 용액의 경화 반응에 의해 성형된 물을 흡수하거나 용액을 경화시키고 경화 반응에 의해 형성된 물을 흡수하는 목적으로 규산염을 흡수제를 사용하였다. 이 연구에서는 기존의 액체 폐기물의 직접 고화 공정에 따라 시멘트 고화로 인한 부피가 감소하였지만 시멘트와 같은 수경성 경화제를 사용하여 안전한 고화체를 생성할 수 없다는 단점은 존재한다고 제시되어있다[19, 20].

국내에서는 신규로 건설된 원전의 경우, 농축 폐액을 CTS(Concentrates Treatment

System)로 완전히 건조하면서 농축 폐액 분말을 일정한 크기의 과립물(Granules)로 만들고, 이 과립물들을 드럼 내에 충전 시켜 과립물과 과립물 사이의 공간을 액상의 에폭시를 이용하여 고화하는 폴리머 고화 공정을 도입하여 활용하였지만 CTS에서 농축 폐액 분말로부터 과립물 형성이 수월하지 못하였고, 이러한 문제로 드럼 내에 충전하였을 경우에 에폭시 수지가 미세 분말로 침투되지 못하여 불건전한 고화체가 형성되는 문제점을 갖고 있다.

앞서 3장에서 제시하였던 분말의 성형을 통하여 펠릿으로 제조하여 폴리머 고화 공정을 이용한다면, 과립물 형성이 균일하게 되기 때문에 기존의 폴리머 고화 공정에서의 문제점이 해결될 것으로 판단된다.

제2절 분말 성형 펠릿의 폴리머 고화 실험

1. 개요

우리나라의 방사성폐기물 인수기준은 크게 방사학적인 측면과 방사성 폐기물의 건전성 확보 측면을 고려하고 있는데 방사학적인 측면에서는 처분장의 성능 목표를 달성하기 위하여 처분되는 방사성 폐기물의 핵종별 총 방사능량을 제한하고 있으며, 방사성 폐기물 건전성 확보 측면에는 기계적 건전성 확보와 방사성 핵종의 누출 정도를 제한하고 있다. 이에 따라서 극 저준위 방사성폐기물을 제외한 거의 모든 방사성 폐기물은 안정화(Stabilization)해야 한다. 안정화는 고화 매질(Solidification agent)을 이용하여 방사성폐기물을 모놀리스(Monolith) 형의 단일 고체 형태로 전환될 때 비로소 달성하게 된다.

본 연구에서 다루는 농축 폐액 분말이나 슬러지 폐기물 등은 습윤 상태의 고체 입자상 폐기물이므로 당연히 안정화시켜 처분되어야 하는 대표적인 방사성 폐기물이다. 이러한 폐기물의 안정화에 이용되는 고화 매질로는 시멘트, 아스팔트, 폴리머, 그리고 세라믹, 유리 등이 있다. 시멘트 등의 고화 매질에 의한 폐기물의 고형화 기술은 분말 상태의 폐기물을 고화 매질과 혼합하여 교반한 후, 이들 혼합물을 일정 시간 동안 양생 또는 경화시켜 단일 고화체로 만드는 기술이다. 이때 분말 상태의 폐기물을 고화 매질로 둘러싸야(Encapsulation) 하고, 제조된 고화체는 일정 크기 이상의 기계적 강도를 가지면서 고화체내에 함유된 방사성 핵종이 누출되지 않도록 하고자 슬러지 폐기

물의 함유율(Incorporation ratio)에 제한을 받게 된다. 이러한 이유로 최종적으로 제조되는 고화체의 부피는 초기 상태의 부피보다 커지게 되어 처분장을 조기에 포화시키는 문제로 이어져 처분 비용을 크게 증가시키는 결과가 발생할 수 있다.

이러한 문제점을 해결하고 분말 상태의 폐기물을 안정화할 목적으로 현재 운영 중인 신 고리 발전소에서 이용 중인 고행화 기술이라는 점과 공정의 간소화의 이점이 있는 폴리머 고화 기술을 채택하여 적용하였으며, Table 21에 폴리머 고화의 장점을 정리하였다.

Table 21. Advantages of Polymer Solidification

Regulatory Approval <ul style="list-style-type: none"> • Only solidification method with NRC-approved Topicals for stabilization of Class A, B, and C wastes • Accepted by all US commercial low-level waste disposal sites 	Chemically Tolerant <ul style="list-style-type: none"> • Tolerates wide waste pH range • Unaffected by sulfates, nitrates, ammonia
Volume Efficient <ul style="list-style-type: none"> • VERI™ produces zero volume increase • VES has 2 to 1 waste to media ratio 	User-Friendly <ul style="list-style-type: none"> • Portable, skid- and trailer-mounted • Reliable, low-maintenance operation
Improved Waste Form <ul style="list-style-type: none"> • Compressive strength 5-10 times cement • Leach index up to 10,000 times cement 	ALARA <ul style="list-style-type: none"> • Shielded to minimize exposure • Remote operation and control • Video monitored
Controlled and Consistent <ul style="list-style-type: none"> • PCP determines media formulation • Reliable translation bench-to full-scale 	Economical <ul style="list-style-type: none"> • Low capital equipment cost • No HIC or burial overpack required • Reduced waste volumes save cost of containers, transport, and burial

폴리머를 방사성폐기물의 고화 매질로 이용하는 대표적인 국가는 미국과 프랑스이다. 프랑스는 습윤 상태의 폐수지와 소각재를 고화하는데 에폭시 수지, 건조 상태의 폐수지나 금속류의 잡기재 들의 고화에는 스타이렌(Styrene) 계열을 사용하고 있다. 반면에 미국에서는 비교적 저렴한 폴리머를 사용하고 있으며, 대표적인 회사로는 DTS (Diversified Technologies Service) 사로서 비닐 에스테르 계열, 비닐 스타이렌(Styrene) 계열로서 Table 22에는 DTS 사의 기술을 나타냈다.

Table 22. Polymer Solidification Technologies of DTS

Vinyl Ester Resin In Situ (VERI™)	Vinyl Ester Styrene (VES)
This process solidifies and encapsulates materials without mixing. VERI™ is excellent for solidification of coarse or granular materials with easy-to-penetrate interstitial spaces.	This process involves high-shear mixing of polymer with waste materials. VES is ideal for wet/liquid wastes, powdered/granular wastes, and other material that lacks easy-to-penetrate interstitial spaces.
VERI™ Applications	VES Applications
<ul style="list-style-type: none"> • Ion exchange bead resin • Spent LOMI/CITROX bead resin • Zeolites • Filter elements (encapsulation) • Hardware pieces (encapsulation) • metal pieces (encapsulation) • Swarfs (encapsulation) 	<ul style="list-style-type: none"> • Evaporator concentrates • Sludges, resin slurries • Chelated decon solutions • Carbon filtration media • Powdered ion exchange media • Filter aids • Incinerator ash

폴리머 고형화 기술에 사용한 폴리머 고화 매질은 소수성을 가지면서 매우 강력한 접착력을 갖는 에폭시 수지이다. 에폭시 수지는 (주)국도화학 제품의 주제(主劑)는 YD-128, 경화제로는 G-1034, 그리고 희석제로는 LGE를 사용하였다. LGE는 주제와 경화제의 혼합을 용이하게 하고, 또한 펠릿과 펠릿 사이의 공극을 채우는 데 유동성을 부여하는 기능을 담당한다.

2. 성형 펠릿의 폴리머 고화 실험

펠릿 성형실험 장치를 이용하여 분말로부터 성형된 일정 크기(Size) 및 모양(Shape)을 갖는 펠릿을 용기에 충전 시킨 후, 소수성의 고 점착성 폴리머가 사용되어야 한다. 폴리머를 고화 매질로 사용하는 이유는 우선 대부분 폴리머는 소수성이고, 단순 주입으로도 펠릿을 고화하기가 용이하다. 그리고 폴리머는 종류에 따라 펠릿과의 접착성(Adhesion)을 증대시켜 압축강도를 향상시킬 수 있으면서 내침출성 또한 향상할 수 있기 때문이다.

일정 크기와 모양을 갖는 펠릿을 폴리머로 고화하기 위해서는 채널링(Channeling) 현상이 없으면서 펠릿 사이의 공극 내로 침투(Penetration)가 용이하면서 그 공극 내에 있던 공기들도 효율적으로 배출 시켜야 한다. 이때 공기 기포를 배출하기 위하여

진공펌프를 사용하기도 한다. 이때 사용되는 폴리머는 상온에서 경화되는 열경화성수지(Thermosetting resin)가 주로 사용되며, 이 열경화성수지는 경화를 위해 주제(主劑)인 폴리머를 경화시킬 수 있는 경화제(Hardener)가 함께 사용된다. 따라서 주제와 경화제의 혼합과 배합(Equivalent ratio)에 따른 혼합물의 점도(Viscosity)가 매우 중요하다. 펠렛 성형물의 폴리머 고화를 위한 최적 폴리머의 선정은 위하여 각 폴리머 구성물(주제, 경화제 및 희석제)의 점도를 측정하고, 주제/경화제/희석제의 배합 비율에 따른 혼합물의 점도를 측정하였다.

가. 폴리머 구성물의 점도 측정

폴리머 구성물(주제, 경화제)의 점도와 배합비율에 따른 혼합물의 점도, 그리고 점성이 높을 경우 점성을 낮추기 위해 희석제가 이용되는데, 이 희석제의 비율에 따른 혼합물의 점도도 함께 측정하였다.

본 연구에서는 폴리머로 다양한 에폭시를 사용하였고, 희석제로 국도화학의 LGE를 사용하였다. LGE는 반응성 희석제(Reactive diluent)로써 지방족 알코올류(Aliphatic alcohols)의 혼합으로 조성된 글리시딜에테르(Glycidyl ether)이다. 폴리머 구성물의 점도 측정은 Brookfield 사의 Viscometer(모델, DV-E)를 이용하였으며, 속도(rpm)에 대한 cP 한계치에 따라 알맞은 Spindle을 교체하여 측정하여 Table 23과 Table 24, Fig. 37과 38에 조건별로 정리하였다.

고화 매질로서의 폴리머의 점도는 폴리머의 이송과 펠렛 사이의 간격으로 폴리머 주입이 쉬워야 하기 때문에 매우 중요하다. Table 23과 24에서 보듯이 주제는 매우 점도가 높고, 희석제의 주입량 증가에 따라 주제의 점도가 낮아짐을 알 수가 있다. 따라서 주제와 희석제 및 경화제의 혼합물의 점도 선정은 Table 23, 24를 이용하여 펠렛을 고화하는 과정에서 결정되어야 하겠다.

Table 23. Viscosity According to the addition of LGE (30 RPM, 단위:cps)

구분		LGE 첨가량					
		0%	5%	10%	15%	20%	25%
주제	YD-128	19200	6000	2860	1229	900	500
	YD-134	2000	1260	800	480	340	240
	THC-4001L	3360	N/A	720	N/A	320	N/A
	THC-4001M	6660	N/A	1500	N/A	580	N/A
경화제	G-1034	19980	10960	5880	3580	2600	1940
	KMH-153XB80	9600	5000	3220	2040	1660	1060
	THC-4001L	3216	1200	520	N/A	N/A	N/A
	THC-4001M	3219	1288	1000	652	408	N/A

Table 24. Viscosity According to the addition of LGE (100 RPM, 단위:cps)

구분		LGE 첨가량					
		0%	5%	10%	15%	20%	25%
주제	YD-128	-	-	3,005	1,380	1,056	660
	YD-134	-	1404	942	642	510	372
	THC-4001L	3,377	-	822	-	450	-
	THC-4001M	-	-	1,740	-	780	-
경화제	G-1034	-	-	-	3,809	2,879	2,220
	KMH-153XB80	-	5231	3461	2,262	1,920	1,302
	THC-4001L	3,341	1,422	738	606	-	-
	THC-4001M	3,215	-	1,080	725	545	440

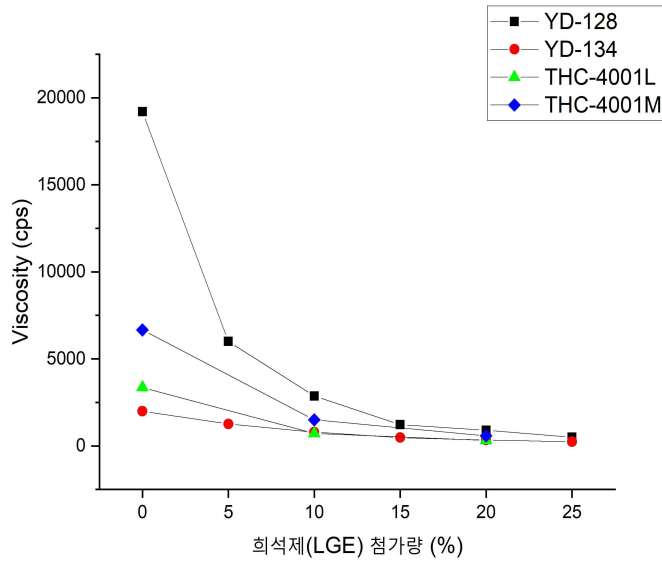


Fig. 38. 30 RPM에서의 희석제(LGE) 첨가량에 따른 폴리머 주제의 점도

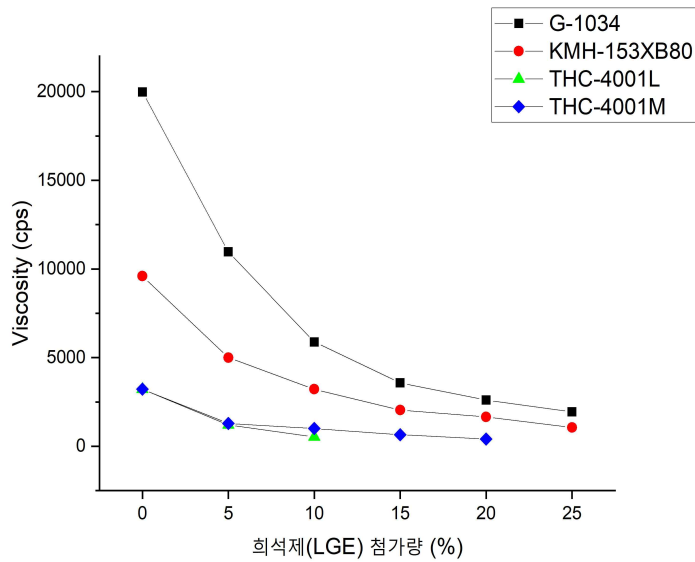


Fig. 39. 30 RPM에서의 희석제(LGE) 첨가량에 따른 폴리머 경화제의 점도

나. 고화 매질의 혼합비율

폴리머 고화의 고화 매질은 점도조절이 용이하고, 경화 이후에는 펠릿을 고정할 수 있는 고 접착력을 지닌 고화 매질로 선정할 필요가 있다. 현재 널리 이용되고 있는 폴리머는 에폭시(Epoxy), 불포화 에스테르(Unsaturated polyester), 디비닐벤젠(Divinylbenzene) 계열 등이 이용되고 있다. 불포화에스테르를 이용하여 고화 매질 선정에 고화체 제조를 하였는데, 경화 과정에서 약 150 °C 의 발열 온도가 발생하였으며, 발열에 따른 고화체 균열이 발생하였다. 폴리머 고화체의 처분 적합성 평가 예비실험에 앞서 고화 매질의 비교군을 형성하기 위해 (주)국도화학의 YD-128(주재) 및 G-1034(경화제) 폴리머와 실링(Sealing) 계열 에폭시인 KRS(주재)와 KH(경화제), 해외에서 유통 중인 YD-134(주재)와 KMH(경화제), 그리고 (주)동양 에폭시의 THC 계열 에폭시를 사용하여 폴리머 구성물에 대한 혼합비율을 변화시키며 예비시편을 제조하였다. 에폭시의 주재/경화제/희석제 혼합비율은 Table 25에 정리하여 나타내었다.

Table 25. 최적 폴리머 선정을 위한 주재와 경화제의 종류별 혼합비

구분 시료번호	에폭시 혼합			
	주재	비율 (wt%)	경화제	비율 (wt%)
001	THC-4001L	90	THC-4001L	70
002	THC-4001M	90	THC-4001M	70
003	KSR-177	65	G-1034	35
004	KSR-177	100	KH-700	100
005	KSR-276M70	45	G-1034	55
006	KSR-276M70	30	KH-700	70
007	YD-128	65	G-1034	35
008	THC-4001L	100	THC-4001L	50
009	THC-4001M	100	THC-4001M	50
010	YD-134X80	40	KMH-153XB80	60

시편을 제조하여 특성 평가 시험 전, 여분의 시편을 제조하여 경화시간, 고화 상태, 간이 침수 시험 등의 결과를 비교하여 007번부터 010 시편 조건을 실험에 적용하였다.



Fig. 40. 사진 특성평가에 사용된 고화체 시편 (007, 008, 009, 010)

다. 성형 펠렛의 폴리머 고화 실험

펠렛은 일정한 크기와 형태를 보이고 있으므로, 액체나 유동성 분말 고체입자를 고화 매질과 혼합하듯이 교반 등의 방법으로 혼합할 수가 없다. 즉 분말로부터 성형된 펠렛을 드럼내에 충전한 후에는 교반하면서 펠렛과 고화 매질을 혼합할 수가 없다는 의미이다. 따라서 Fig. 41와 같이 제작된 폴리머 고화 장치를 이용하여 펠렛을 고화 용기 내에 충전한 후에 폴리머를 고화 용기 하부로 주입하면서 고화 용기 상부로는 진공을 이용하여 펠렛들 사이의 공기는 배출되고 그곳을 폴리머로 채우는 방식으로 폴리머 고화를 수행하였다.

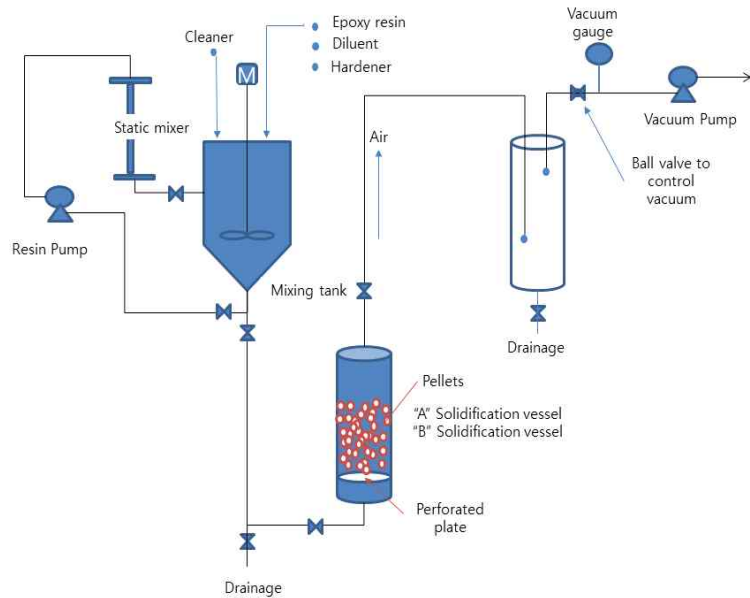


Fig. 41. 성형 펠릿의 폴리머 고화 개념도

이어서 펠릿과 에폭시 혼합물의 안정화를 위한 혼합물의 경화는 빠른 시간내에 완전히 경화되게 하려고 50 °C 로 유지되는 항온조 내에서 수행하였으며(Fig. 42), 또한 이와 비교하기 위하여 상온에서 경화시키면서(Fig. 43) 고화체의 상, 중, 하 부분의 온도 변화를 살펴보았다. 보통 폴리머 경화 시에 발열반응이 일어나는데 고화체 중심부 온도와 고화체 주변 온도의 차가 크면 고화체 내부에서 발생하는 열을 외부로 발산할 수가 없어서 고화체의 내부 및 외부에 많은 균열이 발생하게 된다. 따라서 고화체가 경화 시에 열이 많이 발생할 때에는 열 발생에 따른 내부 온도를 추정하여 그 열을 쉽게 발산시키게 하거나 열을 흡수할 수 있는 열 흡수 물질을 사전에 주입하여 열에 의해 고화체가 균열하는 것을 방지하여야 한다. 또는 고화체 주변의 온도를 높여서 고화체 내부의 온도가 자연히 주변 온도로 강하되도록 하여야만 고화체에 균열이 가지 않게 된다.

본 실험에서의 주변 온도는 50 °C이고, 최고 온도는 89 °C 이었다. 최고 온도에 도달하는 데 걸린 시간은 98분이었다. 최고온도에 도달한 후 80 °C 까지는 108분, 70 °C까지는 136분, 50 °C까지는 260분이 소요되었다. 이 결과와 상온 경화와 비교하여 보면 최고온도에 도달하는 시간은 상온 경화에서는 189분, 50 °C에서는 98분이므로 50 °C에서의 경화는 상온 경화에 비하여 경화시간은 1/2로 단축되었다고 할 수가 있다.

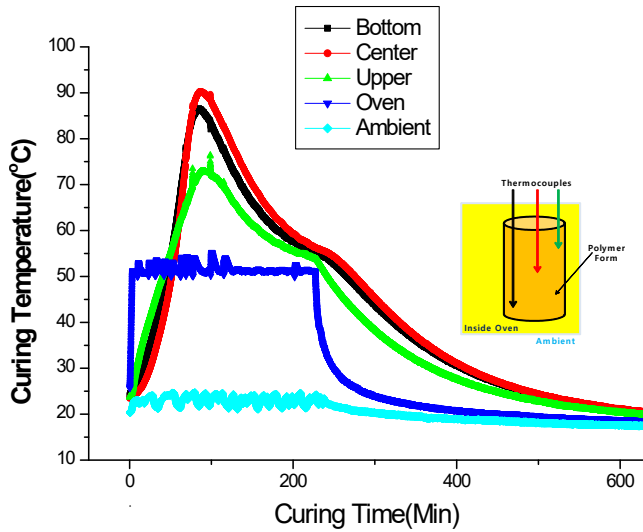


Fig. 42. 펠렛의 폴리머 고화체의 발열온도 측정 (60 °C 경화)

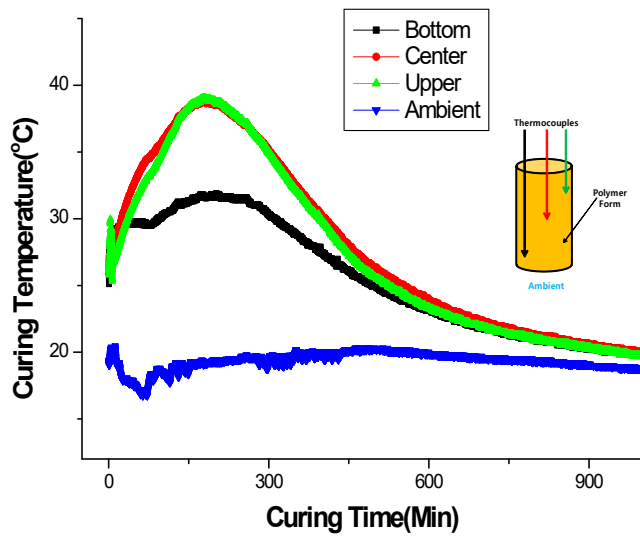


Fig. 43. 펠렛의 폴리머 고화체의 발열온도 측정 (상온경화)

그리고 폴리머 고화체의 시편을 크게 하고, 경화 주변 온도를 60 °C 로 유지되는 항온조 내에서 수행하였는데(Fig. 44), 결과는 앞의 경우에 거의 비슷한 경향을 보였다.

고화체의 중심부 온도는 중합반응 하기 시작한 후 대략 45분에서 최대가 되었음을 알 수가 있고, 이어서 내부 온도는 하강하게 됨을 알 수 있었다. 대략 경화되기 시작한 후 100분 정도에서 중합반응 즉 경화는 완료되었을 것으로 판단된다. 그리고 고화체 주변온도와 고화체 중심온도는 경화하기 시작한 시간으로부터 5시간이 지난 후에 거의 일치하였다. 이어서 고화체를 시편 제조 몰드로부터 제거하였는데, 고화체에서 폴리머의 냄새가 전혀 나지 않은 것으로 보아 고화체는 완전히 경화된 것으로 판단하였다. 이후 폴리머에 의한 펠렛의 고화는 고화 시작 시간으로부터 5시간이 지나며 완료된 것으로 판단하였다.

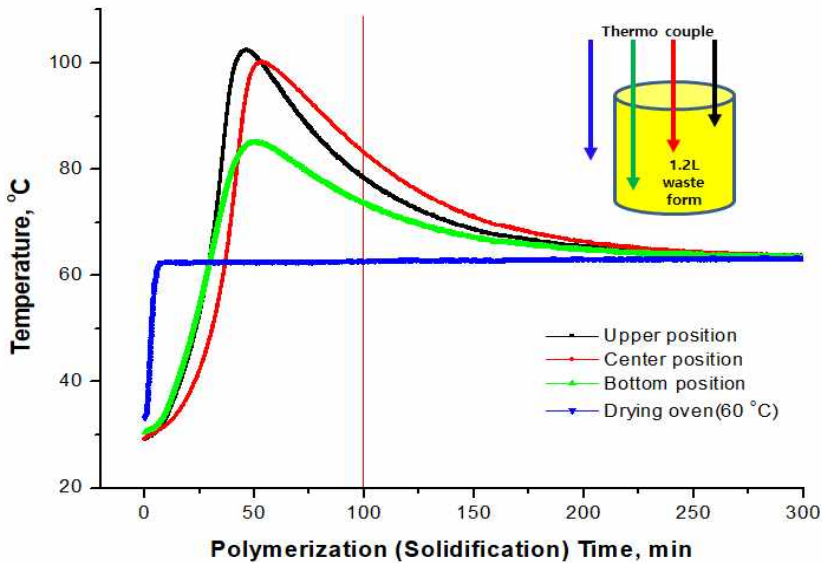


Fig. 44. 펠렛의 폴리머 고화체의 경화시 발열온도 측정

제3절 펠렛 함입 폴리머 고화체의 특성 평가실험

고형화 요건에 의해 제조된 고화체는 폐기물 인수기준에서 제시하고 있는 고화체 특성평가 시험을 통하여 건전성을 충족시켜야 처분이 가능해진다. 폐기물 인수기준에서 제시하고 있는 기준은 구조적 안전성과 핵종 선원량 결정으로 분류할 수 있다.

방사성폐기물이 처분장에서 관리되는 기간 동안 구조적 건전성 유지를 위한 기계적 강도와 물과 접촉하는 환경에서의 형태 유지 등을 장기 보관 동안의 온도 변화에 따른

내구성 변화, 누적 조사량에 대한 고화체 건전성 등을 요구하고 있다. 본 연구에서는 수분을 사용하지 않는 방법으로 실험을 진행하였기에 유리수 측정은 무의미하다고 판단하고 제외하였으며, Table 26에 명시된 실험을 진행하여 폐기물 인수기준에 대한 적합성을 평가하였다.

한편, 펠렛 함유 폴리머 고화체를 경화 주변 온도를 50 °C로 설정하여 경화시킨 고화체를 Fig. 45에 나타냈다.



Fig. 45. 특성평가에 사용되어진 고화체 시험 시편

Table 26. 처분안전성을 위한 폐기물 고화체 판정 기준

번호	시험 항목	판 정 기 준	
		경질 고화체	연질 고화체
1	압축강도 시험	3.44 MPa (500 psig) 이상	시편의 수직변형률이 3%일 때 0.41 MPa(60 psig) 이상
2	침수시험 후 압축강도 시험		
3	열 순환시험 후 압축강도 시험		
4	방사선조사시험 후 압축강도 시험		
5	침출 시험	시편의 침출 지수는 Cs, Sr, Co 핵종에 대하여 6 이상	

1. 압축강도 시험

고화체에 대한 처분장 인수기준에서 고화체의 압축강도는 단순히 처분장내에서 고화체 적재 시 고화체가 수직으로 받는 하중을 고려한 것으로 고화체의 구조적 안전성을

평가하는 데 가장 중요한 시험 항목이다. 압축강도 측정 결과 자료는 경화된 고화체의 건전성을 판별하는데 적용되거나 온도 내구성, 내 방사선, 미생물 영향, 침수시험 전후에 고화체의 안전성을 비교하거나 판정하는 데 사용된다. 10 CFR 61.56(b) (1)[18]에 명시된 “구조적으로 안정한 고화체는 일반적으로 압축 장비 또는 지면 다짐 장비의 무게를 고려한 처분장의 예상조건하에서 물리적인 크기와 형태를 유지해야 한다.”라는 것을 기초로 하고 있다.

시험 시편에 관한 실험은 “KS F 2405(2017) 콘크리트 압축 강도 시험방법”에 따라 진행되며 시험 시편의 제원측정에서 시험 시편의 지름을 0.1 mm, 높이를 1 mm까지 측정하되, 지름은 시험 시편 높이의 중앙에서 서로 직교하는 2방향에 대하여 측정하도록 요구하고 있다. 그리고 시험 시편에 손상 또는 결함이 있어서 시험 결과에 영향을 준다고 판단될 때는 시험을 하지 않거나 또는 그 내용을 기록하도록 하고 있다. 시험 시편의 무게는 표면의 물을 모두 닦아 낸 후에 0.25 % 이하의 눈금을 가진 저울로 측정하도록 하고 있다.

시험방법으로는 시험 시편의 중심축을 가압판의 중심에 일치시키고, 시험 시편의 상·하면을 압축기 상·하의 가압판에 밀착시키고, 이어서 일정한 속도(재하속도)로 시험 시편에 하중을 가하게 하고 있다. 이때 일정하게 하중을 가하는 속도는 매초 0.6 ± 0.4 MPa (= 6.12 ± 4.08 kgf/cm²)로 하고 있다. 하중을 가할 때, 시험 시편이 변형되기 시작한 후 파괴될 때까지 하중을 계속 가하되 시편이 파괴되면 그때의 최대하중을 시편의 단면적으로 나누어 최대 압축강도 값을 계산하도록 한다.

시험 시편의 지름은 아래 식으로 계산 하며,

$$d = \frac{d_1 + d_2}{2} \tag{13}$$

- d ; 시험 시편의 지름(mm)
- d_1, d_2 ; 2방향의 지름(mm)

압축강도는 아래 식으로 산출토록 하고 있다.

$$f = \frac{P}{\pi\left(\frac{d}{2}\right)^2} \quad (14)$$

f ; 압축 강도(MPa)
 P ; 최대 하중(N)

2. 열 순환 시험

중·저준위 방사성폐기물 고화체의 수송이나 임시저장 단계에서 대기의 열적 변화에 놓이게 될 때 저온과 고온의 영향으로 고화체는 균열 등에 의해 약화하게 된다. 폐기물 고화체의 열화정도는 고화체를 구성하는 고화 매질 성분의 양, 재료 간의 결합력, 고화체내 미세성분의 구조 형태와 같은 다양한 영향 인자들에 의해 영향을 받는다. 따라서 고화체 시편을 단기간 주기적인 열 적응력에 놓이게 함으로써 약한 고화체의 처분 배제 여부를 결정할 수 있는 시험항목이다.

따라서 열 순환 시험 후에는 육안검사를 통해 고화체에 큰 균열, 깨짐, 완전 파쇄와 같은 현상은 없어야 하며 큰 결함이 없는 시편은 압축강도를 측정하여 평균 압축강도 값은 3.44 MPa 이상을 요구하게 된다. 처분적합성 평가항목에서 제시하고 있는 고화체 열 순환 시험방법은 “ASTM B553, Thermal cycling test for evaluation of electro plated plastics” 시험법에 의해 수행하도록 요구하고 있다[21].

그러나 미국의 NRC BTP[22]에서는 ASTM B553을 설정한 상한 온도와 하한 온도와는 달리 시멘트 고화체에 대하여 상한 온도와 하한 온도를 각각 60 °C, - 40 °C로 변경하여 열 순환 시험을 시행하도록 권고하고 있기 때문에 이를 근거로 NRC BTP에서 변경하여 제시한 열 순환 주기를 Fig. 46에 나타냈다.

열 순환 시험을 진행하기 위하여 고화 매질의 종류와 혼합비율이 다른 고화체 시편 4개를 제조하여, ASTM B553의 시험방법에 따라 상온 60°C에서의 1시간, 영하 30°C에서의 1시간을 1Cycle 기준으로 총 30회의 열주기 순환(Fig. 46 참조) 시험을 시행하였다. 열 순환 주기 시험을 시행한 후, 각 시편의 시험 후 시편의 제원을 측정하여 시험 전의 시편 제원과 비교하여 시험 후의 부피 변화율과 무게 변화율을 측정하였으며, 이어서 시험후의 시편에 대하여 압축강도를 측정하였다.



Fig. 46. 열 순환 시험의 상한 및 하한 온도(1 주기 = 24 시간)

Table 27. 열 순환시험 전 폴리머 고화체 시편 Data

시편 번호	높이 (mm)	지름 (mm)	무게 (g)	시편 부피 (cm ³)
007-01	104.12	49.95	313.48	195.52
008-03	97.93	49.85	335.38	191.06
009-01	97.22	49.82	313.92	189.48
010-01	99.52	49.59	303.16	192.18

* 시편 번호 : 폴리머 혼합비 번호 - 고화체 제조 번호(Table 25 참조)

3. 침수 시험

전 세계적으로 고화체의 표준 침수 시험방법은 전혀 없지만, 미국의 NRC에서는 AN S 16.1의 침출 시험에 연계하여 침수 시험을 시행할 수 있다고 제시하고 있으며 침수 시험에 사용되는 물은 침출 시험과 같이 탈 이온수나 합성 해수를 사용하여도 된다고 하였다.

침수 시험 후 시편은 외관상으로 균열, 깨짐 및 파쇄와 같은 현상은 없어야 하며, 육안으로 고화체에 결함이 없다면 시편의 압축강도를 측정한다. 이때 침수시험 후 시편의 압축강도는 3.45 MPa 이상, 또는 침수시험 전 압축강도의 75 % 이상이 되어야 한다고 제시하고 있다.

침수 시험 후 압축강도를 측정하기 위해 시험 시편의 크기는 압축강도 시험법의 시

험 시험 조건을 준수하여야 하고, 침수 시험에 사용된 물은 탈 이온수나 합성 해수를 사용하고, ANS 16.1의 침출 시험법에 준하여 수행하였다.

침수 시험에 사용된 물은 Millipore Direct-Q의 초순수 제조 장치로 초순수(전도도 = 1.06 $\mu\text{S}/\text{cm}$)를 생산하여 침수용액으로 사용하였고, 시험 시편의 크기는 압축강도 시험법의 시험 시편의 크기인 직경/높이 = 1/2 (직경 = 50 mm)로 하였다. 침수 용기의 크기는 Fig. 23의 제원처럼 ANS 16.1의 침출 시험법에서 제시한 leachant volume/surface area of specimen = 10 cm가 되도록 하였으며, 침수 용기의 재질은 고화체로부터 누출된 염들이 용기 표면에 부착되지 않도록 PTFE(Poly Tetra Fluoro Ethylene, 테프론) 용기로 하였다. 그리고 고화체 시험 시편을 물속에서 그 주변을 일정한 양의 두께로 물로 덮일 수 있도록 지지시켜야 한다. 이때 지지대로 인하여 지지대와 고화체의 접촉면적은 고화체 표면의 2 % 이하로 하여야 하므로 Fig. 47의 상부 좌측과 같은 지지대를 특별히 고안하였으며, 상부와 하부의 지지대 연결은 고화체로부터 어느 정도 거리를 두게 하면서 플라스틱 줄(뉘싯줄)로 하였다.

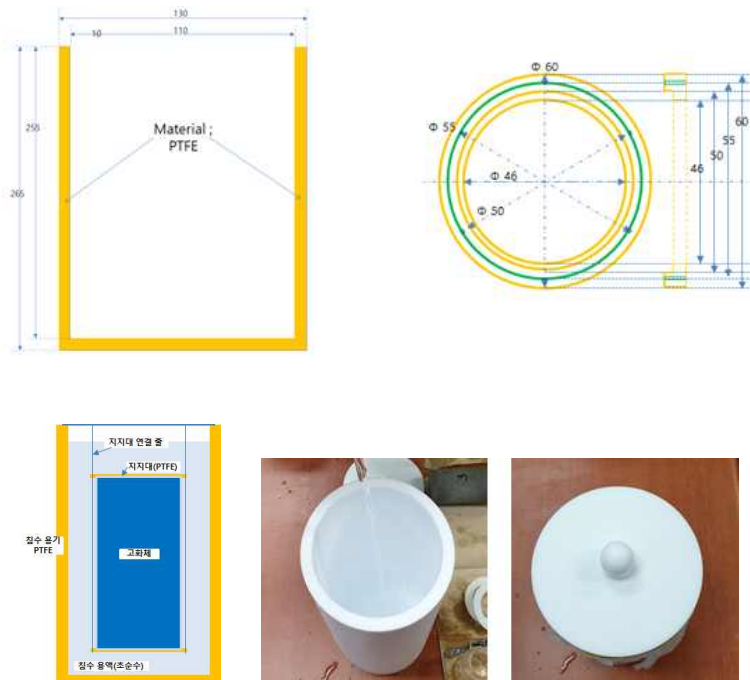


Fig. 47. 침수용기의 제원(上) 및 PTFE 침수용기(下)

침수 시험의 시행은 다음의 순서로 진행하였다.

- 침출 시험 대상 시편을 고화체 하부 지지대 위에 올려놓은 후 상부 지지대를 고화체 상부에 끼워 넣는다.
- 상부 지지대와 하부 지지대를 플라스틱 줄로 연결한다.
- 상부의 연결한 줄을 잡아당겨 침수 용기에 고화체를 서서히 주입한다.

시험 시편을 Fig. 48처럼 침수 시험 시편을 침수용기 중앙에 위치시킨 후, 침수액의 증발을 방지토록 비닐로 침수 용기 상부를 밀폐시키고 침수 용기의 덮개로 침수용기를 덮는다. 이어서 시험 시편을 90일간 물속에 침수시키게 되는데, 90일 침수 이후 시편의 상태를 체크하고 압축강도 측정을 진행하였다.



Fig. 48. 침수 시험 시편의 침수 시험 수행과정

Table 28. 침수시험 전 폴리머 고화체 시편 Data

시편 번호	높이 (mm)	지름 (mm)	무게 (g)	시편 부피 (cm ³)
007-06	101.86	50.02	325.56	200.13
007-07	102.37	50.00	326.44	200.93
007-09	98.16	49.83	336.68	191.34
008-02	102.01	49.91	324.96	199.47
009-02	102.54	49.65	309.49	198.43
010-02	101.66	49.63	307.16	196.63

* 시편 번호 : 폴리머 혼합비 번호 - 고화체 제조 번호(Table 25 참조)

4. 방사선 조사 시험

고화체의 방사선조사 시험법은 프랑스를 제외하고는 어느 국가에도 없는 상황이지만 미국의 NRC/BTP(Rev. 1)에서는 대략 10 Ci/ft³ 농도의 Cs-137 또는 Sr-90이 함유되어 있는 고화체가 300년의 저장기간 동안 106 Gy(108 rad)에 노출될 수가 있기 때문에 고화체의 손상 정도를 파악하기 위하여 방사선 조사시험을 시행하여야 한다고 제시하고 있다. 그리고 시멘트 고화체내에 이온교환수지를 비롯한 유기물이 포함되어 있지 않거나, 누적 피폭선량이 107 Gy가 되지 않을 때에는 방사선조사 시험을 시행할 필요가 없다고도 제시하고 있다. 즉, 이는 이온교환수지를 비롯한 유기물을 함유하거나 피폭선량이 107 Gy이상이 될 것으로 예상되는 고화체에 대하여서는 방사선 조사시험을 시행이 필요하다는 의미를 가지고 있다.

한편, 미국의 NRC/BTP에 의하면 누적 피폭선량이 106 Gy에서도 수지는 크게 영향을 받지 않는다고 하며, 시멘트 물질은 107 Gy 이상의 방사선 피폭량에도 영향을 받지 않는다고 알려져 있다. 또한 단위 시간당 조사선량율은 프랑스의 경우는 200 Gy/h로 정의되어 있지만, 미국의 NRC/BTP(Rev. 1)에서는 조사선량율에 대한 정의가 없이 누적 조사량을 106 Gy(108 rad)만을 정의하고 있다.

조사시험 후, 미국의 NRC/BTP(Rev. 1)에서는 조사된 시편을 육안 검사하여 균열, 깨짐, 파괴와 같은 현상은 없어야 하며, 결함이 없는 시편은 압축강도를 측정하여 평균 압축강도는 3.44 MPa 이상이어야 한다고 제시하고 있다.

방사선 조사시험을 진행하기 위해 폴리머 고화 시편을 제조하여 방사선 조사 시 고화체가 받게 되는 총 누적선량이 106 Gy(108 rad)가 되도록 한국원자력연구원 첨단방사선연구소(정읍) 방사선조사시설에서 수행하였다. 방사선 조사가 완료된 시험 시편에 대하여 육안검사에 의한 고화체 외관 관찰, 시험 시편의 제원 측정을 통하여 시편 평가, 그리고 압축강도를 측정하도록 하였다.

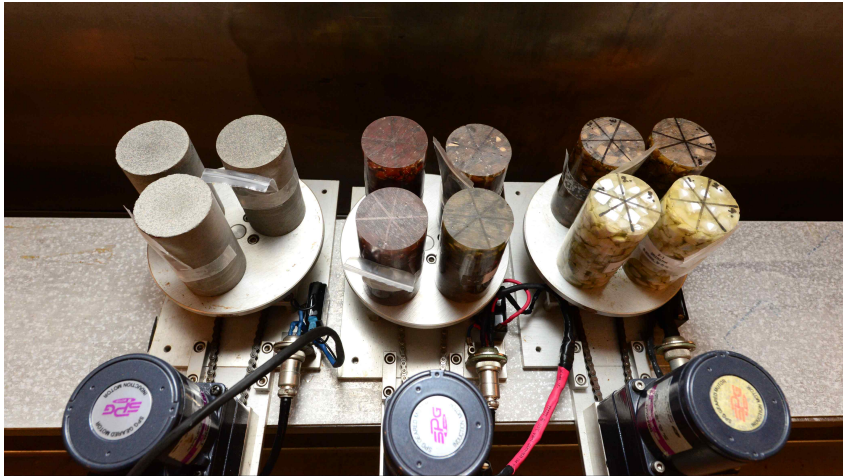


Fig. 49 펠릿 함입 폴리머 고화체 방사선 조사 시험

5. 침출 시험

방사성고화체로부터 핵종의 누출정도를 평가하는 침출 시험은 ANS 16.1에 의해 수행되며, 총 90일간의 시험 기간을 요구하고 있다. 이 시험법은 고화체의 모든 면을 침출수에 노출하는 시험법으로써 90일이라는 시험 기간은 시간 경과에 따라서 고화체로부터의 침출 기구(mechanism)에 변화가 있는지 단순히 알아보기 위한 것이다. 보통 침출 시험에서 고화체로부터 관찰된 초기 침출률은 대부분 확산에 의해 설명되고 있지만, 반면에 확산에 의한 침출 기구와는 다른 침식, 용해 또는 부식 등에 의한 침출 기구는 오랜 침출 시간이 지나야만 설명이 가능하다.

ANS 16.1의 침출 시험법과는 달리 IAEA의 HEPSE method는 고화체의 상부 한 면만을 침출수에 노출하고, 240일(침출수 교체는 총 21회) 이상 침출시키도록 하며, 그 결과는 유효 확산계수로 표현된다.

침수 시험과 마찬가지로 침출수(침출제, leachant)로 사용된 물은 Millipore Direct-Q의 초순수 제조 장치로 제조된 초순수(전도도 = $1.06 \mu\text{S}/\text{cm}$)이었다. 이 초순수의 전기전도도는 ANS 16.1에서 제시된 $5 \mu\text{S}/\text{cm}$ 보다도 낮은 것이었다. 시험 시편의 크기가 직경/높이 = 1 (직경 = 50 mm)인 까닭으로 ANS 16.1의 침출 시험법에서 제시한 $\text{leachant volume/surface area of specimen} = 10 \text{ cm}$ 가 되도록 침출 용기(Fig. 49 참조)를 제작하였으며, 침출 용기의 재질은 고화체로부터 누출된 염들이 용기 내부 표

면에 전혀 부착되지 않도록 하기 위하여 PTFE(Polytetrafluoroethylene, 테프론) 물질로 하였다.

그리고 고화체 시험 시편을 물(침출수)속에 침수시켜 침출 시험을 시행할 때, 고화체의 측면과 상하부 면을 침출수가 일정한 두께(거리)로 덮을 수가 있어야 한다. 이를 위해서 고화체는 물속에서 자기의 위치를 유지할 수 있도록 지지가 되어야 한다. 고화체 지지대와 고화체와의 접촉면적은 고화체 표면의 2% 이하로 하여야 하므로 Fig. 50의 우측과 같은 지지대를 특별히 고안하였으며, 지지대 상부와 하부는 그사이에 위치한 고화체 외부 표면과 접촉되지 않도록 하면서 고화체 표면으로부터 어느 정도 거리를 유지하도록 플라스틱 줄(뉘싯줄)로 연결하였다.

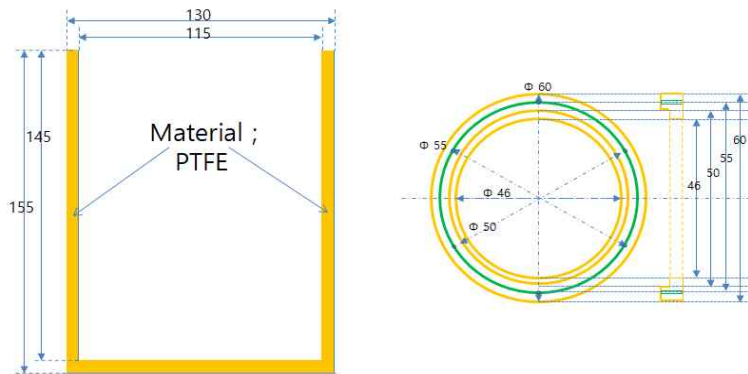


Fig. 50. 침출 용기의 설계 및 PTFE 침출 용기 재원

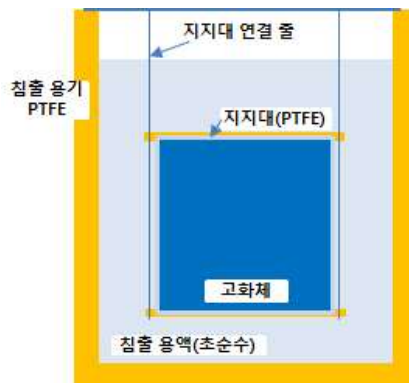


Fig. 51. 고화체 침출 시험 개념도

침출 시험의 수행은 다음의 순서로 진행하였다.

- 침출 시험 대상 시편을 고화체 하부 지지대 위에 올려놓은 후 상부 지지대를 고화체 상부에 끼워 넣는다.
- 상부 지지대와 하부 지지대를 플라스틱 줄로 연결한다.
- 상부의 연결 줄을 잡아당겨 침수용기에 고화체를 서서히 주입한다.

이어서 시험 시편을 Fig. 52처럼 침출 시험 시편을 침출 용기 중앙에 위치시킨 후, 침출액의 증발을 방지하고자 비닐로 침출 용기 상부를 밀폐시키고, 이어서 침출 용기의 덮개로 침출 용기를 덮고 침출 시험 시편을 침출제 내에서 90일간 침수시키게 되는데, 이 동안 총 10회의 침출액을 교체하게 된다.



Fig. 52. 침출 시험 시편의 침출 용기 내 장착과 침출 시험 수행

침출 시험법인 ANS 16.1에서 기술된 침출 시험을 시작한 후 2시간, 7시간, 1일, 2일, 3일, 4일, 5일, 19일, 47일, 90일 간격으로 침출액을 교체하고, 교체된 침출액의 pH와 전기 전도도(Electric Conductivity)를 측정하였다.

방사성폐기물의 침출 특성 연구의 추적자는 일반적으로 Cs-137, Co-60, Sr-90 등을 사용한다[23]. 침출 시험을 하기 위해 제조한 모의 시료에 Cs, Co, Sr의 화합물을 첨가한 후 펠렛으로 성형하여 고화체 시편을 제조하였으며, 침출수 내 함유된 Cs, Co, Sr의 함유량을 분석하였다.

제4절 펠릿 함유 폴리머 고화체의 특성 평가 결과 및 고찰

1. 압축강도 특성

폴리머 고화 시편은 벤토나이트 펠릿을 사용하였으며, 고화 매질의 종류와 혼합비율을 다르게 하여 건조기(Hot cell)에서 60 °C에서 24시간 이상 경화를 통하여 제조하였다. Fig. 53은 압축강도 전후의 모습이며, 측정된 결과를 Table 29에 정리하였다. 이후 Fig. 54에는 시편별 압축강도 결과를 나타내었으며, Fig. 55부터 Fig. 61번까지 시편들의 Stress-Strain 곡선을 나타내었다.



Fig. 53. 압축강도 시험 전·후 시편 (상; 시험 전, 하; 시험 후)

Table 29. 폴리머 고화체 시험 시편의 압축강도

시편 번호	높이 (mm)	지름 (mm)	무게 (g)	시편 부피 (cm ³)	압축 강도 (MPa)
007-03	107.3	49.9	325.2	209.7	25.5
007-08	107.0	49.9	325.8	209.2	28.2
008-01	97.1	49.9	333.4	189.8	33.4
009-03	100.7	50.0	323.3	197.6	33.8
010-03	104.8	49.6	310.1	202.4	10.6
010-06	100.3	49.6	300.6	193.7	9.71
010-09	100.4	49.7	301.0	194.7	9.36

* 시편 번호 : 폴리머 혼합비 번호 - 고화체 제조 번호(Table 25 참조)

폴리머 고화체의 압축강도 시험을 분석한 결과, 최소 압축강도는 010 시편에서 측정된 9.36 MPa 이었으며, 최대 압축강도는 009 시편에서 측정된 33.8 MPa의 강도였다. 이는 고화 매질의 종류와 혼합비율에 따라 고화체의 강도가 달라지는 것을 의미한다. 인수기준 측면에서 접근하였을 경우, 처분장에서 제시하고 있는 인수조건인 3.44 MPa 보다 약 3배 에서 10배 높은 수치가 측정되었으며, 고화체의 구조적 안전성을 충분히 만족시키는 결과라고 판단된다.

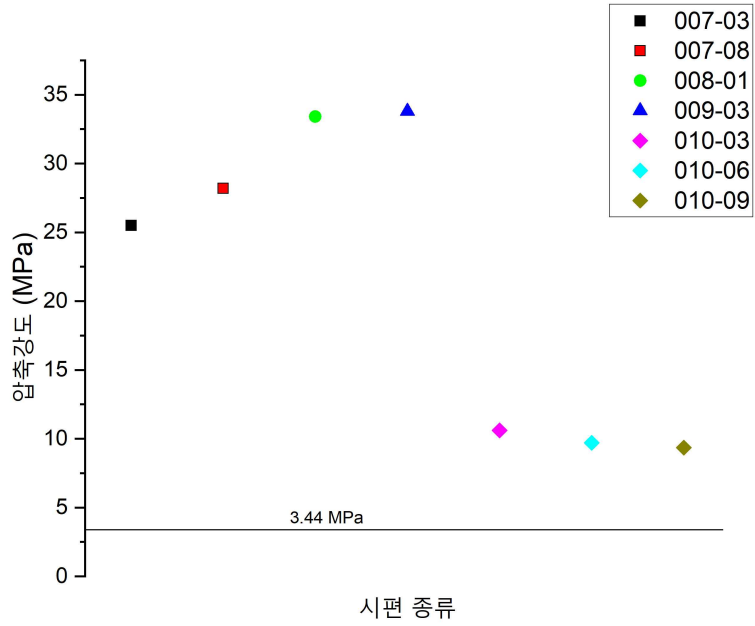


Fig. 54. 폴리머 고화체 시편 압축강도 결과

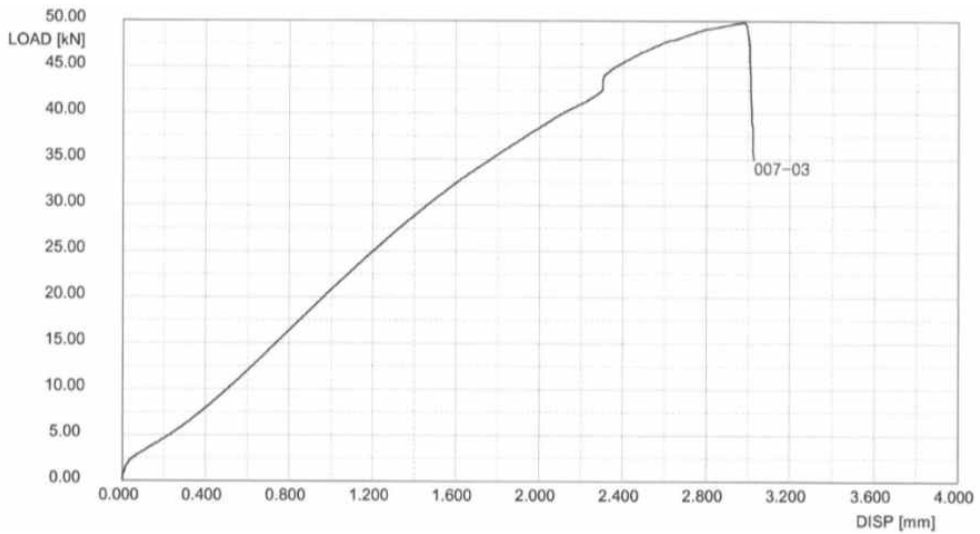


Fig. 55. 007-03 시편의 Stress - Strain Curve

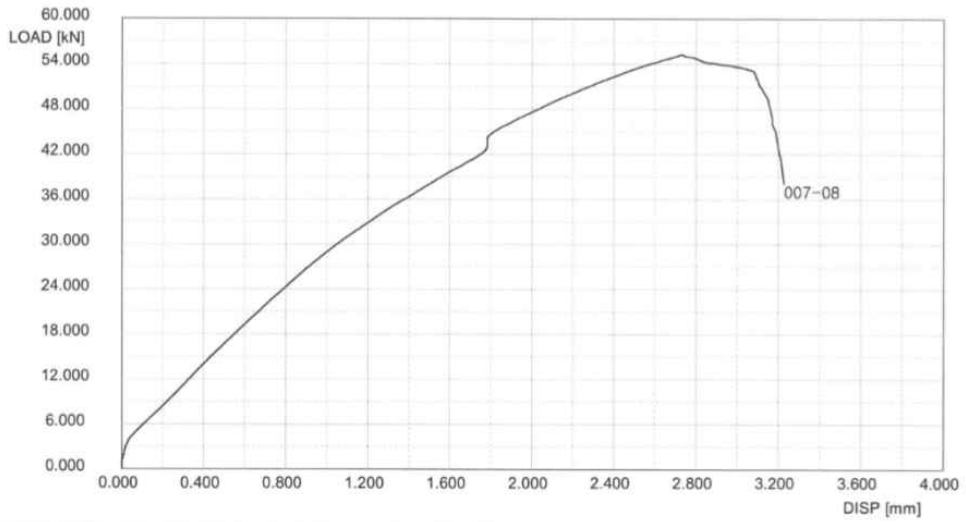


Fig. 56. 007-08 시편의 Stress - Strain Curve

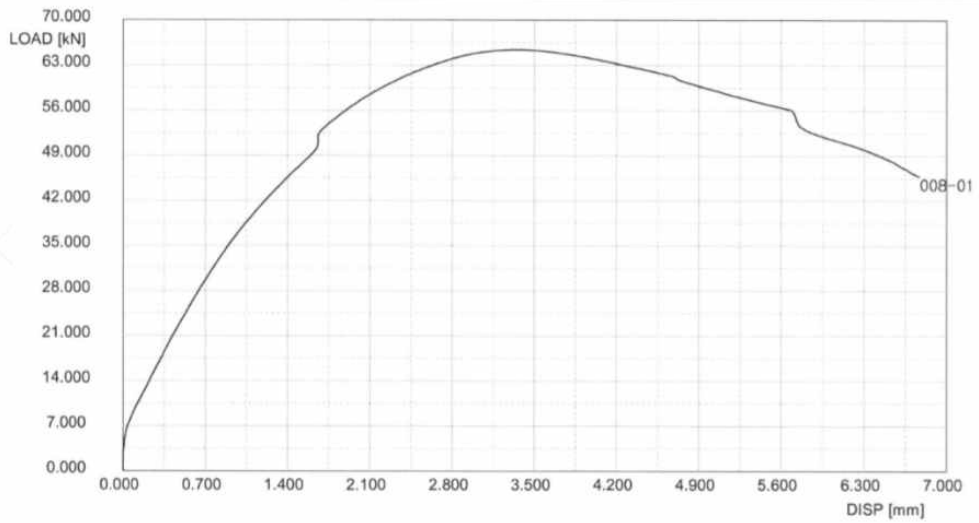


Fig. 57. 008-01 시편의 Stress - Strain Curve

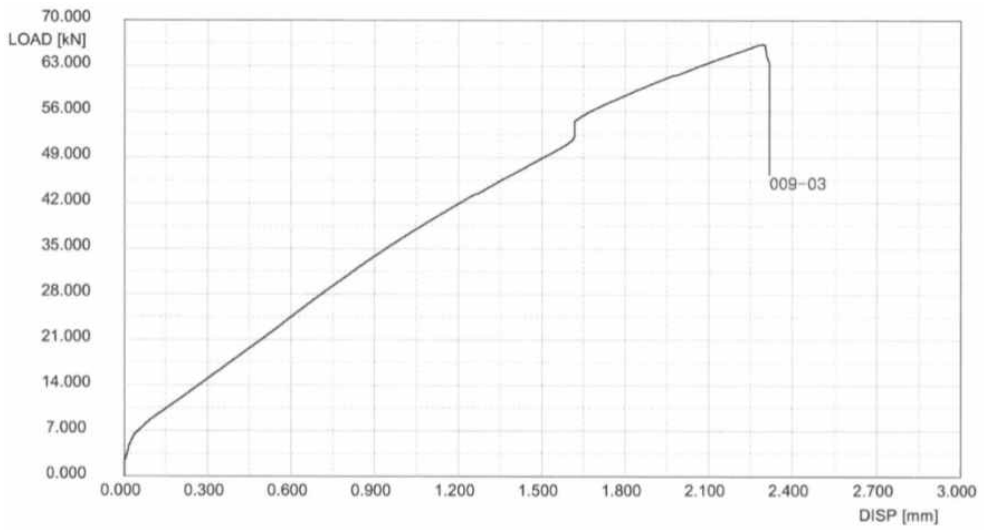


Fig. 58. 009-03 시편의 Stress - Strain Curve

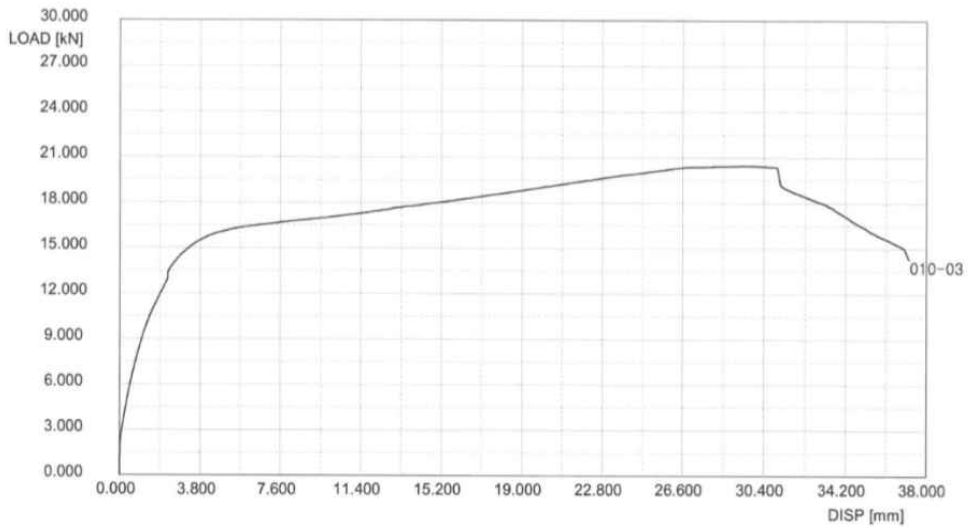


Fig. 59. 010-03 시편의 Stress - Strain Curve

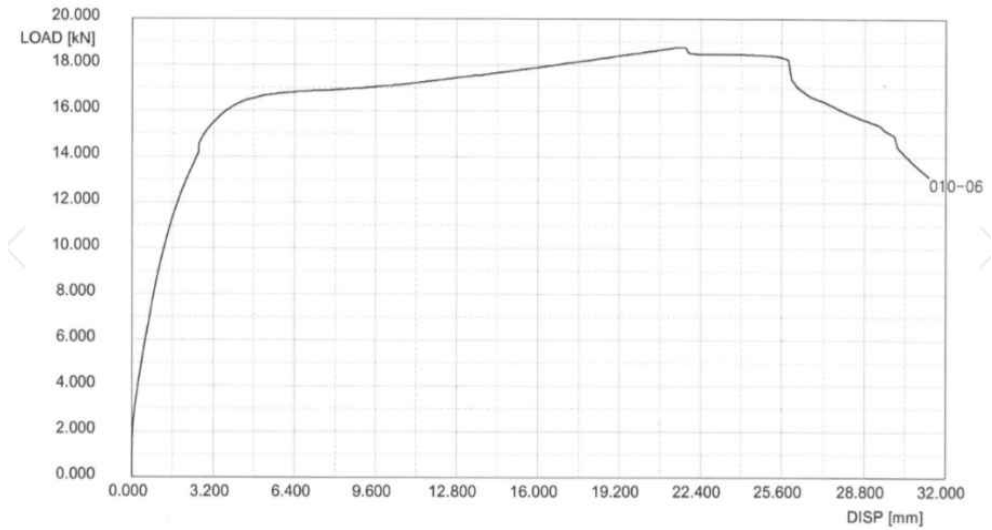


Fig. 60. 010-06 시편의 Stress - Strain Curve

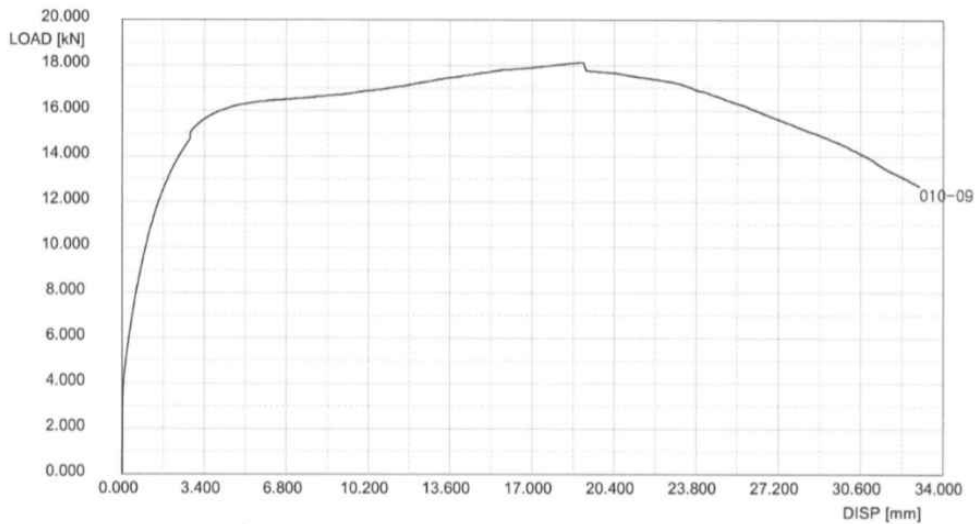


Fig. 61. 010-09 시편의 Stress - Strain Curve

2. 열 순환 특성

열 순환 시험 전·후의 폴리머 고화체의 변화와 열 순환 시험 후 압축강도를 Table 30과 Table 31에 정리하였으며, 정리하였으며, Fig. 64부터 Fig. 67번까지 시편들의 S

tress-Strain 곡선을 나타내었다. 무게의 변화율은 - 0.1 % 에서 - 2.0 % 의 미세한 변화가 있었으며 이러한 변화가 발생하는 이유로는 초기 시편 재원 측정에서 미세한 오차가 발생하였거나, 폴리머 고화체가 열 순환 시험 도중 미세한 수축 현상이 발생하였다고 판단된다. 열 순환 시험 후 고화체에서는 팽윤현상 및 균열이나 부스러짐 현상은 발생하지 않았으며, 최종적으로 폴리머 고화체는 온도변화에 큰 영향을 받지 않는다는 결과를 도출하였다.



Fig. 62. 열 순환시험 후 시편 (上) 및 열 순환시험 후 압축강도 측정 시편 (下)

Table 30. 열 순환시험 전후의 각 시험 시편별 재원에 따른 부피 및 무게 변화율

시편 번호		평균직경 (mm)	평균높이 (mm)	부피 변화율		무게 변화율	
				(cm ³)	(%)	(g)	(%)
007-01	실험전	49.9	101.0	197.4	0.5	313.6	- 0.1
	실험후	50.0	101.1	198.4		313.4	
008-03	실험전	49.8	97.9	190.6	0.1	335.4	- 0.2
	실험후	49.9	97.6	190.8		334.8	
009-01	실험전	49.8	97.3	189.4	0.6	314.0	- 0.1
	실험후	50.0	97.1	190.6		313.7	
010-01	실험전	49.1	99.3	187.9	0.3	299.6	- 2.0
	실험후	49.4	98.4	188.5		293.4	

Table 31. 열 순환시험 후 압축강도

시편번호	평균직경 (mm)	평균높이 (mm)	부피 (cm ³)	무게 (g)	압축강도 (MPa)
007-01	50.0	101.1	198.4	313.4	27.1
008-03	49.9	97.6	190.8	334.8	34.7
009-01	50.0	97.1	190.6	313.7	37.4
010-01	49.4	98.4	188.5	293.4	13.7

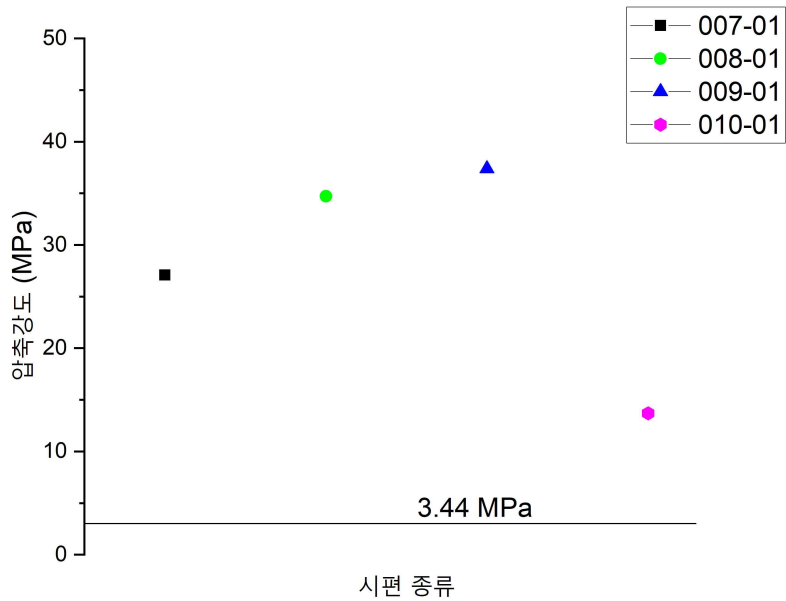


Fig. 63. 폴리머 고화체의 열 순환시험 후 압축강도 결과

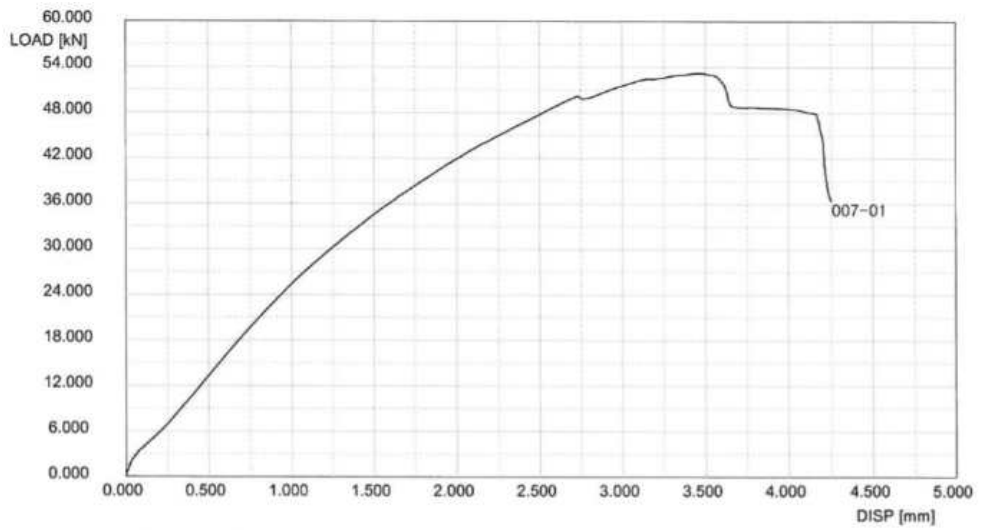


Fig. 64. 007-01 시편의 Stress - Strain Curve

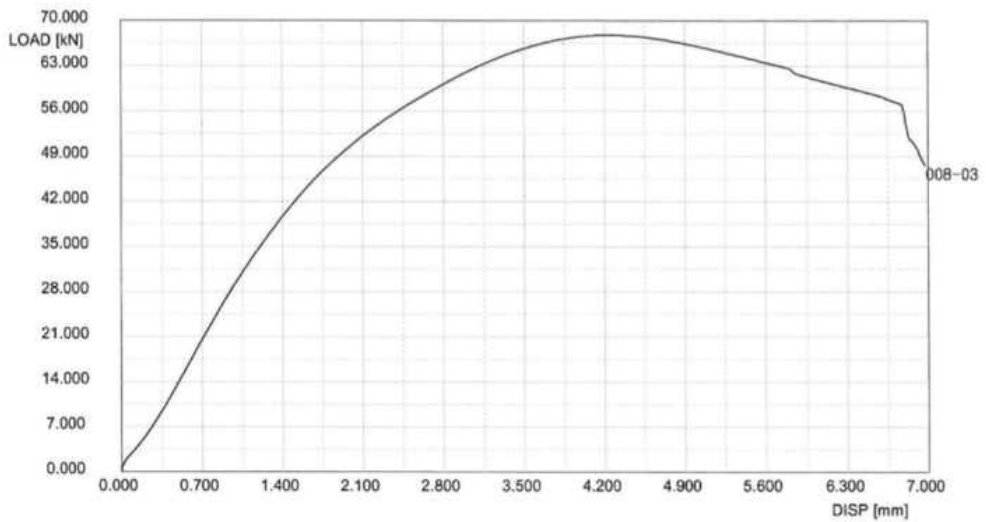


Fig. 65. 008-03 시편의 Stress - Strain Curve

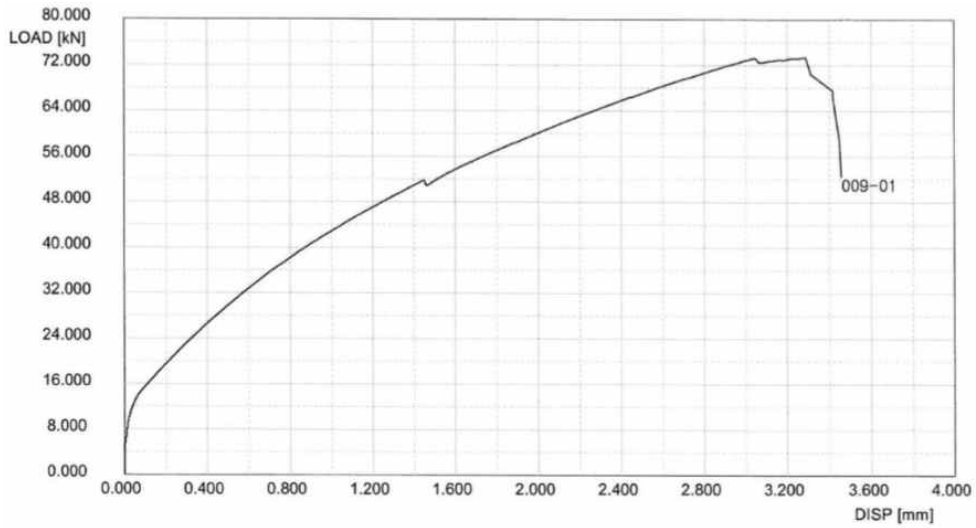


Fig. 66. 009-01 시편의 Stress - Strain Curve

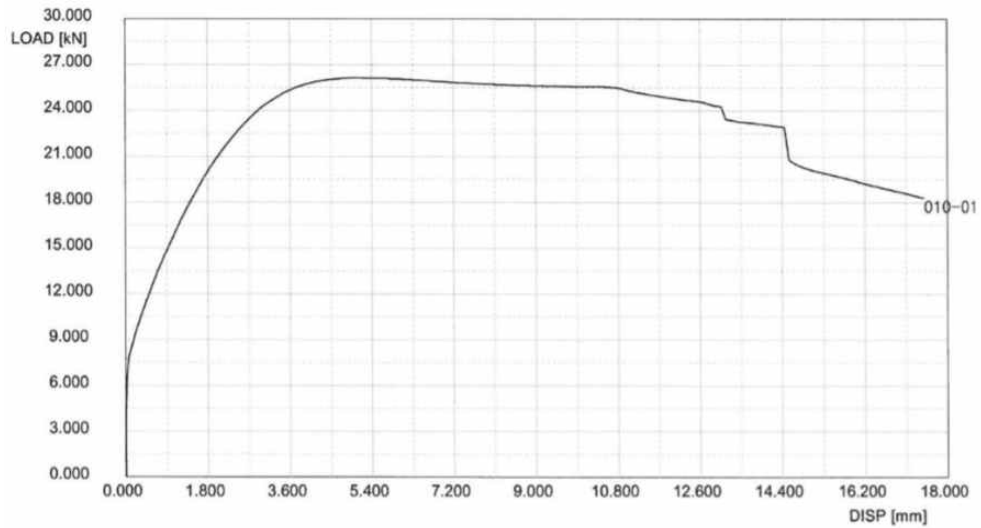


Fig. 67. 010-01 시편의 Stress - Strain Curve

3. 침수 특성

침수시험 결과 고화체 시편에서의 변화(팽윤 현상, 균열 및 부스러짐)는 없었으며(Fig. 68), 압축강도 측정값은 Table 33에 정리하여 그래프로 나타내었다(Fig. 69). 모든

고화체 시편의 압축강도는 방사성폐기물 처분장 인수 기준치인 3.44 MPa 이상을 만족하였다.



Fig. 68. 침수시험 후 시편(上) 및 침수시험 후 압축강도 측정 시편(下)

Table 32. 침수시험 전후의 각 시험 시편별 제원에 따른 부피 및 무게 변화율

시편 번호		평균직경 (mm)	평균높이 (mm)	부피 변화율		무게 변화율	
				(cm ³)	(%)	(g)	(%)
007-06	시험전	50.0	101.8	200.1	2.8	325.6	- 1.36
	시험후	50.2	104.1	205.9		321.2	
007-07	시험전	50.0	102.3	201.0	2.1	326.4	- 1.66
	시험후	50.1	104.1	205.1		321.1	
007-09	시험전	49.8	98.16	191.3	9.8	336.7	- 2.27
	시험후	50.1	107.7	212.2		329.2	
008-02	시험전	49.9	102.0	199.5	- 2.8	325.0	3.97
	시험후	50.1	98.5	194.1		338.4	
009-02	시험전	49.6	102.5	198.4	0.6	309.5	5.2
	시험후	50.0	101.7	199.6		326.4	
010-02	시험전	49.6	101.6	196.6	- 0.7	307.2	- 2.0
	시험후	49.5	101.5	195.2		301.1	

Table 33. 침수시험 후 압축강도

시편번호	평균직경 (mm)	평균높이 (mm)	부피 (cm ³)	무게 (g)	압축강도 (MPa)
007-06	50.2	104.1	205.9	321.2	24.8
007-07	50.1	104.1	205.1	321.1	24.2
007-09	50.1	107.7	212.2	329.2	24.8
008-02	50.1	98.5	194.1	338.4	15.6
009-02	50.0	101.7	199.6	326.4	35.1
010-02	49.5	101.5	195.2	301.1	8.24

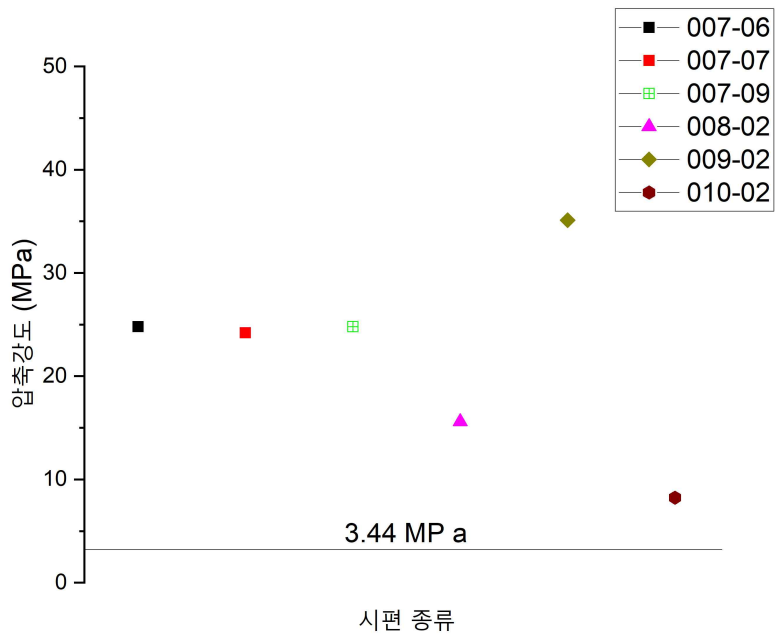


Fig. 69. 폴리머 고화체의 열 순환시험 후 압축강도 결과

4. 방사선조사 특성

방사선 조사시험은 시편을 건조기(60 °C)에서 24시간 이상 경화시켰다. 함입된 펠렛의 재료는 모의 시료로 선정된 벤토나이트, 토양, 콘크리트, 설프 총 4가지의 분말 슬러지를 이용하였다. 방사선조사 시험의 경우, 007번의 YD-128/G-1034 폴리머를 이

용하여 방사선 조사에 따른 시료별 영향을 확인하고자 고화체에 함입되는 모의 폐기물 시료 펠릿을 다르게 하여 제조한 8개의 시편을 사용하여 실험을 진행하였다.

고화체 시편은 1.0E+07 Gy 범위에서 방사선 조사선량이 피폭되도록 방사선조사 장치의 가동시간을 정하여 조사시켰으며(Table 34), 방사선 조사시험 완료 후의 시편은 폴리머 구성물의 변색 외에는 균열, 팽윤, 부스러짐 등이 발견되지 않았다. 육안검사를 완료 한 시편은 인수기준 만족 여부를 평가하기 위해 압축강도를 측정하였다. Fig. 70 은 방사선 조사시험이 끝난 시편의 압축강도 측정 시 시편이 파단되기 전과 후의 모습이다.

Table 34. 방사선조사를 위한 조사 조건

Item	Condition	
Room condition	Temperature	- start (0 hr) : 28.2 °C
		- stop (106.50 hr) : 28.5 °C
	Pressure	~ 1 atm
	Medium	air
Irradiation Period	2019.07.17. 14:31 ~ 2019.07.22. 02:37	
Irradiation condition	Type	- Gamma-ray : Co-60(210,536 Ci)
		- Energy spectrum : 1.17 & 1.33 MeV (Ave.:1.25MeV)
	Total absorbed dose	1.00 × 10 ⁶ Gy (1.00 × 10 ⁸ rad)
	Average Absorbed dose rate	9.40 × 10 ⁴ Gy/hr (9.40 × 10 ⁶ rad/hr)
	Irradiation time	106.50 hr
	Dosimeter	Alanine dosimeter



Fig. 70. 방사선 조사시험 후 시편 (上) 및 방사선 조사시험 후 압축강도 측정 시편 (下)

각각의 고화체 총 8개의 시편 중 동일한 조건의 시편들의 경우, 평균값을 구하여 Table 35에 정리하였다. 최소 압축강도는 16.4 MPa이며, 최대 압축강도는 37 MPa로 인 수 기준보다 최소 6.9배에서 최대 9.2배로 기준을 모두 만족하였고, 고화체의 구조적 안정성이 확보되는 것으로 평가되었다.

Table 35. 방사선조사시험 전후의 각 시험 시편별 제원에 따른 부피 및 무게 변화율

시편 번호		평균직경 (mm)	평균높이 (mm)	부피 변화율		무게 변화율	
				(cm ³)	(%)	(g)	(%)
IR1	실험전	49.79	99.07	192.9	0.5	320.5	0.5
	실험후	49.79	99.08	193.9		322.3	
IR2	실험전	49.90	101.7	198.8	0	349.7	- 0.02
	실험후	49.91	101.70	198.8		349.6	
IR3	실험전	49.87	97.99	191.6	0	319.4	- 0.03
	실험후	49.89	98.01	191.6		319.3	
IR4	실험전	49.93	100.74	196.1	0.3	319.1	0.1
	실험후	49.94	100.75	196.6		319.5	
IR5	실험전	49.79	102.16	199.0	0	369.3	- 0.08
	실험후	49.81	102.17	199.0		369.0	
IR6	실험전	49.79	101.18	197.0	0	376.5	- 0.2
	실험후	49.81	101.19	197.0		375.7	

Table 36. 방사선조사시험 후 압축강도

시편번호	평균직경 (mm)	평균높이 (mm)	부피 (cm ³)	무게 (g)	압축강도 (MPa)
IR1	49.79	99.08	193.9	322.3	28.4
IR2	49.91	101.70	198.8	349.6	30.5
IR3	49.89	98.01	191.6	319.3	23.9
IR4	49.94	100.75	196.6	319.5	37.0
IR5	49.81	102.17	199.0	369.0	31.6
IR6	49.81	101.19	197.0	375.7	16.4

5. 침출 특성

90일간의 침출 시험 후, 침출 시험 시편의 제원을 측정하고 침출 시험 전의 시편 제원과 비교하여 그 비교 결과를 Table 37에 나타냈다. Table 37에서 보듯이 침출 시험 후의 고화체 시편의 부피 및 무게 변화율은 매우 미미한 것으로 보이며, 침수시험 결과와 거의 유사한 것으로 판단되어 진다. 침출 시험 종료 후의 고화체 시편을 Fig. 71에 나타냈다.

Table 37. 침출 시험을 위한 고화체 시험 시편의 제원

시편번호	펠릿 성분	시편크기 (mm)	Tracer (g)			시편무게 (g)			시편 표면적 (cm ²)	시편 부피 (cm ³)
			Co	Cs	Sr	펠릿	Epoxy	Total		
L1	Bentonite	H=51.13	1.0212	0.8510	0.6808	87.65	70.12	157.77	20.34	103.98
		D=50.90								
L2	Soil	H=50.09	1.0595	0.8829	0.7063	90.94	62.94	153.88	19.69	98.61
		D=50.08								
L3	Concrete	H=50.63	1.1132	0.9277	0.7421	95.55	59.36	154.91	20.15	102.04
		D=50.67								
L4	Concentrate	H=49.71	1.0553	0.8794	0.7035	90.58	60.32	150.9	19.42	96.56
		D=49.74								
L5	Sump	H=50.52	1.0766	0.8972	0.7177	92.41	65.08	157.49	20.09	101.5
		D=50.59								
L6	bottom drain	H=50.73	1.0689	0.8908	0.7126	91.75	66.98	158.73	20.24	102.68
		D=50.78								



Fig. 71. 침출 시험 종료 후의 고화체 시편 모습

가. 침출 시험 후 침출액의 pH 측정 결과

침출 시험 과정에서 침출액 교체마다 교체된 침출액의 pH(Orion 4 Star 사용)를 측정하여 Table 38에 나타냈으며, 이를 Fig. 72에 나타냈다. Table 38과 Fig. 72에서 보듯이 시험 pH 농도는 5.85였으며 측정된 침출액들의 pH는 대부분 7.0 이하로 측정되었다. Table 38의 결과를 기반으로 분석하였을 때, 폴리머를 이용한 고화체는 화학종의 누출이 없다고 볼 수 있다.

Table 38. 침출 시험 후 교체된 침출액의 pH 측정결과

번호	누적일수(일)	pH of Leachant(pH)					
		L1	L2	L3	L4	L5	L6
0	0	5.85	5.85	5.85	5.85	5.85	5.85
1	0.083	7.4	7.4	7.4	7.0	8.1	8.2
2	0.292	6.5	6.3	6.5	6.8	7.6	6.6
3	1	6.5	6.8	6.5	7.0	7.1	7.3
4	2	6.0	6.2	6.2	6.2	6.5	6.4
5	3	6.7	6.3	6.5	6.4	7.4	6.5
6	4	6.4	6.4	6.6	6.6	6.6	7.4
7	5	6.6	6.2	6.5	5.6	5.8	5.7
8	19	5.6	5.3	6.0	5.9	6.3	6.3
9	47	5.7	5.6	5.5	5.5	5.9	5.6
10	90	6.9	6.6	6.1	6.7	6.9	6.7

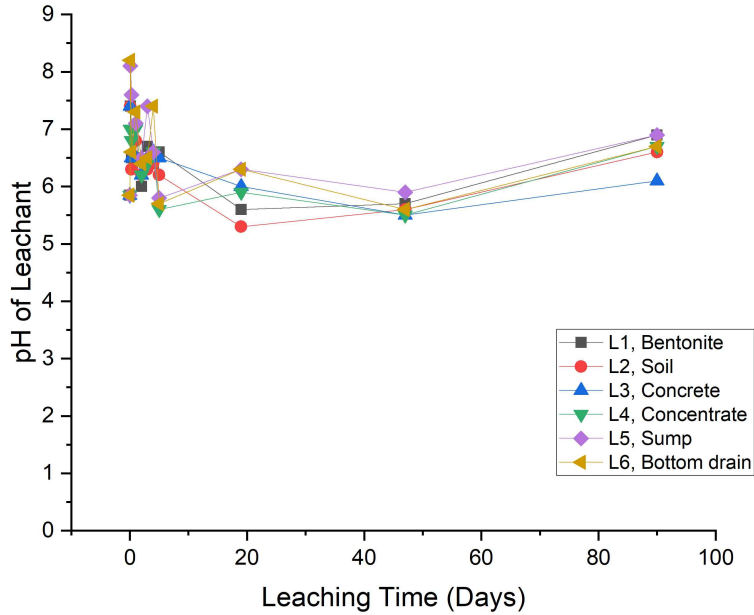


Fig. 72. 침출액 교체에 따른 침출액의 pH 비교

나. 침출액의 전기 전도도(Conductivity) 측정 결과

침출 시험 과정에서 침출액 교체마다 교체된 침출액의 전도도(Conductivity, Orion 4 Star 사용)를 측정하여 Table 39에 나타냈으며, 이를 도식화하여 Fig. 73에 나타냈다.

Table 39과 Fig. 73에서 보듯이 시험 초기는 침출액 교체 기간이 비교적 단기적이기 때문에 고화체로부터 염 성분이 적게 빠져나오고 있지만 교체 기간이 긴 시간 경우, 1번 시편과 3번 시편의 Conductivity가 높게 나온 것으로 보아 고화체로부터 다른 시편에 비해 염 성분이 상대적으로 많이 빠져나오고 있음을 알 수가 있다.

Table 39. 침출 시험 후의 교체된 침출액의 전도도(Conductivity) 측정 결과

번호	누적일수(일)	Eh of leachant(EC), uS/cm					
		L1	L2	L3	L4	L5	L6
0	0	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91
1	0.083	5.4	5.5	4.0	4.2	4.0	5.0
2	0.292	2.2	2.1	2.1	2.1	2.3	3.0
3	1	3.0	1.7	2.1	1.9	2.9	2.8
4	2	1.5	1.5	3.2	1.8	2.3	2.1
5	3	1.5	1.6	3.6	1.5	1.6	1.5
6	4	1.4	2.0	3.4	1.5	1.5	2.6
7	5	2.4	1.9	2.9	1.3	1.3	1.3
8	19	4.8	4.0	1.8	3.7	3.5	3.7
9	47	8.4	3.8	1.5	3.4	2.8	4.4
10	90	10.5	2.4	8.7	2.5	2.3	3.3

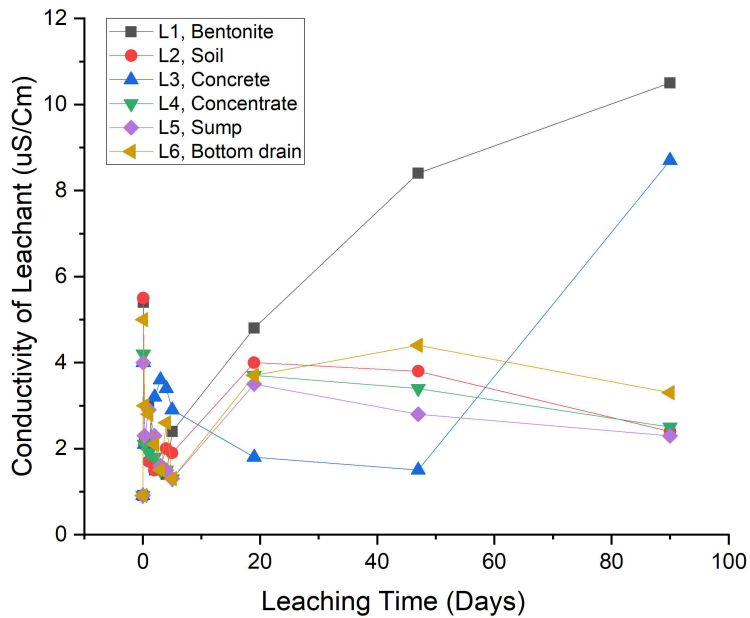
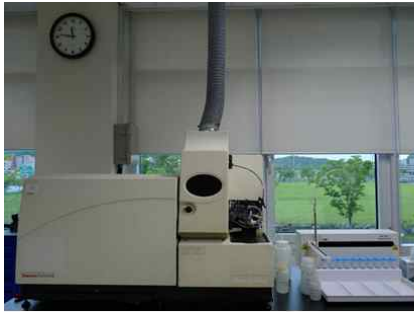


Fig. 73. 침출액 교체에 따른 침출액의 전도도(Conductivity) 비교

다. 침출액 내의 화학종 분석

화학종의 농도분석은 화학종의 특성 차이로 인하여 Co와 Sr는 ICP-AES, Cs는 ICP-MS로 분석하였다.



ICP-MS (x series)



ICP-AES (OPTIMA 8300)

Fig. 74. 화학종 분석을 위한 ICP-MS(좌) 와 ICP-AES(우)

그리고 ICP-AES와 ICP-MS의 농도 분석을 위한 측정 조건은 아래와 같았다.

Table 40. 장치별 화학종 측정 조건

측정조건	ICP-AES	ICP-MS
RF Power	1,300 W	1,300 W
RF Frequency	40.68 MHz	27.12 MHz
Coolant Gas Flow	15 L/min	13 L/min
Nebulizer Gas Flow	0.7 L/min	0.9 L/min
Auxiliary Gas Flow		0.7 L/min
Sampler Cone		Ni
Skimmer Cone		Ni

침출액 내의 화학종을 분석하기 위하여 모의 시료에 화학종으로 사용되는 Co, Cs, Sr를 각 1 %씩 첨가하여 펠렛으로 성형하여 고화체를 제조하였다. 제조된 고화체의 시편별 핵종의 농도를 계산하기 위하여 Table 37에 정리된 고화체 제원을 이용하여 고화체에 함유된 화학종의 농도를 계산하여 Table 41에 정리하여 나타내었다. L1 시편을 기준으로 하였을 때, 고화체 제조에 사용된 펠렛의 질량은 87.65 g이고, 펠렛 성

형에 사용된 벤토나이트의 비율은 각각의 화학종이 1 %씩 총 3 % 사용되었기 때문에 97 wt. % 가 된다. 이를 기반으로 계산을 하면 펠릿에 포함된 벤토나이트의 질량은 8 5.02 g이 되며, Co, Cs, Sr의 초기 농도는 각각 0.8765 g으로 계산된다. 이처럼 시험 시편별, 화학종별로 계산하였다.

Table 41. 침출 시험 시편별 화학종의 초기 농도

시편번호	펠릿성분	Co (mg)	Cs (mg)	Sr (mg)
L1	Bentonite	463.17	671.60	376.07
L2	Soil	480.54	696.78	390.15
L3	Concrete	504.89	732.13	409.93
L4	Concentrate	478.63	694.02	388.61
L5	Sump	488.29	708.06	396.45
L6	bottom drain	484.80	703.01	393.63

또한 침출 시험에서 ANS 16.1에서 요구하는 시간에 침출액을 새로운 침출수로 교체 하면서 각 교체 시기에 교체된 침출액으로부터 일정량의 시료를 채취하여 ICP-AES와 ICP-MS에 의해 분석한 농도를 시험 시편별로 Table 42부터 47에 나타냈다.

Table 42. 침출수 교체 시 침출액의 화학종 농도(침출 시험 시편 L1)

번호	누적일수 (일)	침출수		농도 (mg)		
		pH	EC	Co	Cs	Sr
0	0	5.85	0.91	463.17	671.60	376.07
1	0.083	7.4	5.4	N/A	N/A	N/A
2	0.292	6.5	2.2	N/A	N/A	N/A
3	1	6.5	3.0	N/A	N/A	N/A
4	2	6.0	1.5	N/A	N/A	N/A
5	3	6.7	1.5	N/A	N/A	N/A
6	4	6.4	1.4	N/A	N/A	N/A
7	5	6.6	2.4	N/A	N/A	N/A
8	19	5.6	4.8	N/A	0.5612	N/A
9	47	5.7	8.4	2.3180	5.3558	10.9922
10	90	6.9	10.5	11.3826	13.9812	43.9688

Table 43. 침출수 교체 시 침출액의 화학종 농도(침출 시험 시편 L2)

번호	누적일수 (일)	침출수		농도 (mg)		
		pH	EC	Co	Cs	Sr
0	0	5.85	0.91	480.54	696.78	390.15
1	0.083	7.4	791.0	0.1770	0.4012	16.5318
2	0.292	6.3	800.0	0.1770	0.1652	10.6318
3	1	6.8	1,198.0	N/A	N/A	N/A
4	2	6.2	1,027.0	N/A	N/A	N/A
5	3	6.3	870.0	N/A	N/A	N/A
6	4	6.4	718.0	N/A	N/A	N/A
7	5	6.2	703.0	N/A	N/A	N/A
8	19	5.3	2,626.0	N/A	N/A	N/A
9	47	5.6	2,220.0	N/A	N/A	N/A
10	90	6.6	1,784.0	N/A	N/A	N/A

Table 44. 침출수 교체 시 침출액의 화학종 농도(침출 시험 시편 L3)

번호	누적일수 (일)	침출수		농도 (mg)		
		pH	EC	Co	Cs	Sr
0	0	5.85	0.91	504.89	732.13	409.93
1	0.083	7.4	4.0	0.1573	0.0847	0
2	0.292	6.5	2.1	0.0605	2.1659	0.9075
3	1	6.5	2.1	0.0605	15.5727	0.8107
4	2	6.2	3.2	0.1815	382.8803	13.3221
5	3	6.5	3.6	0.0968	348.6978	15.7421
6	4	6.6	3.4	0.1331	313.9708	26.6442
7	5	6.5	2.9	0.0484	223.3176	3.6300
8	19	6.0	1.8	5.7596	3111.8540	538.9945
9	47	5.5	1.5	4.3197	1483.9200	581.3808
10	90	6.1	8.7	3.4485	355.1350	168.3594

Table 45. 침출수 교체 시 침출액의 화학종 농도(침출 시험 시편 L4)

번호	누적일수 (일)	침출수		농도 (mg)		
		pH	EC	Co	Cs	Sr
0	0	5.85	0.91	478.63	694.02	388.61
1	0.083	7.0	4.2	0.2552	2.3664	44.1264
2	0.292	6.8	2.1	N/A	0.5568	10.4516
3	1	7.0	1.9	N/A	0.2784	4.6400
4	2	6.2	1.8	N/A	N/A	N/A
5	3	6.4	1.5	N/A	N/A	N/A
6	4	6.6	1.5	N/A	N/A	N/A
7	5	5.6	1.3	N/A	N/A	N/A
8	19	5.9	3.7	N/A	N/A	N/A
9	47	5.5	3.4	N/A	N/A	N/A
10	90	6.7	2.5	N/A	N/A	N/A

Table 46. 침출수 교체 시 침출액의 화학종 농도(침출 시험 시편 L5)

번호	누적일수 (일)	침출수		농도 (mg)		
		pH	EC	Co	Cs	Sr
0	0	5.85	0.91	488.29	708.06	396.45
1	0.083	8.1	4.0	0.1560	0.3000	0.6360
2	0.292	7.6	2.3	0.2400	0.1920	0.2880
3	1	7.1	2.9	N/A	N/A	N/A
4	2	6.5	2.3	N/A	N/A	N/A
5	3	7.4	1.6	N/A	N/A	N/A
6	4	6.6	1.5	N/A	N/A	N/A
7	5	5.8	1.3	N/A	N/A	N/A
8	19	6.3	3.5	N/A	0.3240	N/A
9	47	5.9	2.8	N/A	0.0240	N/A
10	90	6.9	2.3	N/A	0.0360	N/A

Table 47. 침출수 교체 시 침출액의 화학종 농도(침출 시험 시편 L6)

번호	누적일수 (일)	침출수		농도 (mg)		
		pH	EC	Co	Cs	Sr
0	0	5.85	0.91	484.80	703.01	393.63
1	0.083	8.2	5.0	0.3267	0.1573	N/A
2	0.292	6.6	3.0	N/A	N/A	N/A
3	1	7.3	2.8	N/A	N/A	N/A
4	2	6.4	2.1	N/A	N/A	N/A
5	3	6.5	1.5	N/A	N/A	N/A
6	4	7.4	2.6	N/A	N/A	N/A
7	5	5.7	1.3	N/A	N/A	N/A
8	19	6.3	3.7	N/A	N/A	N/A
9	47	5.6	4.4	N/A	N/A	N/A
10	90	6.7	3.3	N/A	N/A	N/A

라. 화학종의 침출 지수 산출 및 평가

고화체로부터 누출된 화학종이나 핵종의 침출 지수(leachability index)의 계산은 다음과 같은 절차에 의해서 계산되어 진다. 우선 침출된 핵종이나 화학종의 농도를 분석한 후, 아래 식을 이용하여 유효 확산계수(Effective diffusivity, diffusion coefficient)를 구한다.

$$D = \pi \left[\frac{a_n/A_c}{(\Delta t)_n} \right]^2 \left[\frac{V}{S} \right] T \quad (15)$$

여기서,

D = 유효 확산계수 (cm^2/s)

V = 시편의 체적 (cm^3)

S = 시편의 표면적 (cm^2)

$(\Delta t)_n = t_n - t_{n-1}$, n번째 침출 구간에서의 기간 (s)

$T = [\frac{1}{2}(t_n^{1/2} + t_{n-1}^{1/2})]^2$, n번째 침출 구간의 평균 시간을 나타내는 침출 시간 (s)

이어서, 앞서 구한 각 침출 구간에서의 유효 확산계수들을 아래 식처럼 합하여 10으로 나누어 평균 침출 지수를 구한다.

$$Li = \frac{1}{10} \sum_{n=1}^{10} [\log(1/Di)]_n \quad (16)$$

이들 침출 지수 산출을 위한 계산식으로부터 구한 값을 시험 시편 번호별 및 화학종별로 구분하여 Table 49 부터 54까지 나타냈으며, 산출된 침출 지수들을 Fig. 75부터 80에 정리하였으며, 이를 기반으로 각 시편에서의 화학종별 평균 침출 지수를 아래에 나타냈다(Table 48).

Table 48. 침출 시험 시편의 화학종별 평균 침출 지수

구 분	펠렛 성분	침출 지수		
		Co	Cs	Sr
L1	Bentonite	8.87	10.28	8.66
L2	Soil	9.84	10.64	7.14
L3	Concrete	10.04	6.19	7.46
L4	Concentrate	9.58	9.90	7.31
L5	Sump	9.76	12.52	10.12
L6	bottom drain	9.37	11.13	N/A

Table 49. 화학종의 침출 지수 계산(침출 시험 시편 L1)

Leach Interval		Leach Time(sec)		Released Amount (ppm)			Released ratio (released/initial)			volume/surface ratio	Effective diffusivity (cm ² /s)			Leachability Index			
		duration time (sec)	mean time of the leaching interval (sec)														
No	sec	$(\Delta t)_n$	T	a_n			a_n/A_o			V/S	$D = \pi \left[\frac{a_n/A_o}{(\Delta t)_n} \right]^2 \left[\frac{V}{S} \right]^2 T$			$Li = \log(1/Di)$			
				Co	Cs	Sr	Co	Cs	Sr		Co	Cs	Sr	Co	Cs	Sr	
1	7,200	7,200	1,800	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	
2	25,200	18,000	14,835	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	
3	86,400	61,200	51,231	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	
4	172,800	86,400	125,894	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	
5	259,200	86,400	213,818	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	
6	345,600	86,400	300,849	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	
7	432,000	86,400	387,596	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	
8	1,641,600	1,209,600	939,462	N/A	0.56	N/A	N/A	1.12E-03	N/A	0.83	N/A	1.76E-12	N/A	N/A	11.75	N/A	
9	4,060,800	2,419,200	2,716,550	2.32E+00	5.36	10.99	1.69E-02	1.07E-02	2.40E-02	0.83	2.89E-10	1.16E-10	5.82E-10	9.54	9.94	9.24	
10	7,776,000	3,715,200	5,768,861	1.14E+01	13.98	43.97	8.30E-02	2.80E-02	9.59E-02	0.83	6.27E-09	7.12E-10	8.39E-09	8.20	9.15	8.08	
														평균	8.87	10.28	8.66

* $T = \left[\frac{1}{2} (t_n^{1/2} + t_{n-1}^{1/2}) \right]^2$, $t = \sum (\Delta t)_n$

Table 50. 화학종의 침출 지수 계산(침출 시험 시편 L2)

Leach Interval		Leach Time(sec)		Released Amount (ppm)	Released ratio (released/initial)	volume/surface ratio	Effective diffusivity (cm ² /s)			Leachability Index						
		duration time (sec)	mean time of the leaching interval (sec)													
No	sec	$(\Delta t)_n$	T	a_n			a_n/A_o			V/S	$D = \pi \left[\frac{a_n/A_o}{(\Delta t)_n} \right]^2 \left[\frac{V}{S} \right]^2 T$			$Li = \log(1/Di)$		
				Co	Cs	Sr	Co	Cs	Sr		Co	Cs	Sr	Co	Cs	Sr
1	7,200	7,200	1,800	1.77E-01	0.40	16.53	1.29E-03	8.02E-04	3.61E-02	0.83	1.26E-10	4.87E-11	9.85E-08	9.90	10.31	7.01
2	25,200	18,000	14,835	1.77E-01	0.17	10.63	1.29E-03	3.30E-04	2.32E-02	0.83	1.66E-10	1.09E-11	5.37E-08	9.78	10.96	7.27
3	86,400	61,200	51,231	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
4	172,800	86,400	125,894	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
5	259,200	86,400	213,818	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
6	345,600	86,400	300,849	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
7	432,000	86,400	387,596	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
8	1,641,600	1,209,600	939,462	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
9	4,060,800	2,419,200	2,716,550	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
10	7,776,000	3,715,200	5,768,861	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
													평균	9.84	10.64	7.14

$$* T = \left[\frac{1}{2} (t_n^{1/2} + t_{n-1}^{1/2}) \right]^2, \quad t = \sum (\Delta t)_n$$

Table 51. 화학종의 침출 지수 계산(침출 시험 시편 L3)

Leach Interval		Leach Time(sec)		Released Amount (ppm)			Released ratio (released/initial)			volume/surface ratio	Effective diffusivity (cm ² /s)			Leachability Index		
		duration time (sec)	mean time of the leaching interval (sec)													
No	sec	$(\Delta t)_n$	T	a_n			a_n/A_o			V/S	$D = \pi \left[\frac{a_n/A_o}{(\Delta t)_n} \right]^2 \left[\frac{V}{S} \right]^2 T$			$Li = \log(1/Di)$		
				Co	Cs	Sr	Co	Cs	Sr		Co	Cs	Sr	Co	Cs	Sr
1	7,200	7,200	1,800	1.57E-01	0.08	N/A	1.15E-03	1.69E-04	N/A	0.83	9.96E-11	2.17E-12	N/A	10.00	11.66	N/A
2	25,200	18,000	14,835	6.05E-02	2.17	0.91	4.41E-04	4.33E-03	1.98E-03	0.83	1.94E-11	1.87E-09	3.91E-10	10.71	8.73	9.41
3	86,400	61,200	51,231	6.05E-02	15.57	0.81	4.41E-04	3.11E-02	1.77E-03	0.83	5.80E-12	2.89E-08	9.33E-11	11.24	7.54	10.03
4	172,800	86,400	125,894	1.82E-01	382.88	13.32	1.32E-03	7.65E-01	2.91E-02	0.83	6.44E-11	2.15E-05	3.11E-08	10.19	4.67	7.51
5	259,200	86,400	213,818	9.68E-02	348.70	15.74	7.06E-04	6.97E-01	3.43E-02	0.83	3.11E-11	3.04E-05	7.37E-08	10.51	4.52	7.13
6	345,600	86,400	300,849	1.33E-01	313.97	26.64	9.70E-04	6.28E-01	5.81E-02	0.83	8.27E-11	3.46E-05	2.97E-07	10.08	4.46	6.53
7	432,000	86,400	387,596	4.84E-02	223.32	3.63	3.53E-04	4.46E-01	7.92E-03	0.83	1.41E-11	2.26E-05	7.10E-09	10.85	4.65	8.15
8	1,641,600	1,209,600	939,462	5.76E+00	3,111.85	538.99	4.20E-02	6.22E+00	1.18E+00	0.83	2.47E-09	5.42E-05	1.94E-06	8.61	4.27	5.71
9	4,060,800	2,419,200	2,716,550	4.32E+00	1,483.92	581.38	3.15E-02	2.97E+00	1.27E+00	0.83	1.00E-09	8.91E-06	1.63E-06	9.00	5.05	5.79
10	7,776,000	3,715,200	5,768,861	3.45E+00	355.14	168.36	2.51E-02	7.10E-01	3.67E-01	0.83	5.76E-10	4.59E-07	1.23E-07	9.24	6.34	6.91
													평균	10.04	6.19	7.46

* $T = \left[\frac{1}{2} (t_n^{1/2} + t_{n-1}^{1/2}) \right]^2$, $t = \sum (\Delta t)_n$

Table 52. 화학종의 침출 지수 계산(침출 시험 시편 L4)

Leach Interval		Leach Time(sec)		Released Amount (ppm)			Released ratio (released/initial)			volume/surface ratio	Effective diffusivity (cm ² /s)			Leachability Index		
		duration time (sec)	mean time of the leaching interval (sec)													
No	sec	$(\Delta t)_n$	T	a_n			a_n/A_o			V/S	$D = \pi \left[\frac{a_n/A_o}{(\Delta t)_n} \right]^2 \left[\frac{V}{S} \right]^2 T$			$Li = \log(1/Di)$		
				Co	Cs	Sr	Co	Cs	Sr		Co	Cs	Sr	Co	Cs	Sr
1	7,200	7,200	1,800	2.55E-01	2.37	44.13	1.86E-03	4.73E-03	9.63E-02	0.83	2.62E-10	1.69E-09	7.02E-07	9.58	8.77	6.15
2	25,200	18,000	14,835	N/A	0.56	10.45	N/A	1.11E-03	2.28E-02	0.83	N/A	1.24E-10	5.19E-08	N/A	9.91	7.28
3	86,400	61,200	51,231	N/A	0.28	4.64	N/A	5.57E-04	1.01E-02	0.83	N/A	9.24E-12	3.06E-09	N/A	11.03	8.51
4	172,800	86,400	125,894	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
5	259,200	86,400	213,818	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
6	345,600	86,400	300,849	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
7	432,000	86,400	387,596	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
8	1,641,600	1,209,600	939,462	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
9	4,060,800	2,419,200	2,716,550	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
10	7,776,000	3,715,200	5,768,861	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
													평균	9.58	9.90	7.31

$$* T = \left[\frac{1}{2} (t_n^{1/2} + t_{n-1}^{1/2}) \right]^2, \quad t = \sum (\Delta t)_n$$

Table 53. 화학종의 침출 지수 계산(침출 시험 시편 L5)

Leach Interval		Leach Time(sec)		Released Amount (ppm)	Released ratio (released/initial)	volume/surface ratio	Effective diffusivity (cm ² /s)			Leachability Index						
		duration time (sec)	mean time of the leaching interval (sec)													
No	sec	$(\Delta t)_n$	T	a_n			a_n/A_o			V/S	$D = \pi \left[\frac{a_n/A_o}{(\Delta t)_n} \right]^2 \left[\frac{V}{S} \right]^2 T$			$Li = \log(1/Di)$		
				Co	Cs	Sr	Co	Cs	Sr		Co	Cs	Sr	Co	Cs	Sr
1	7,200	7,200	1,800	1.56E-01	0.30	0.64	1.14E-03	6.00E-04	1.39E-03	0.83	9.79E-11	2.72E-11	1.46E-10	10.01	10.56	9.84
2	25,200	18,000	14,835	2.40E-01	0.19	0.29	1.75E-03	3.84E-04	6.28E-04	0.83	3.06E-10	1.47E-11	3.94E-11	9.51	10.83	10.40
3	86,400	61,200	51,231	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
4	172,800	86,400	125,894	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
5	259,200	86,400	213,818	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
6	345,600	86,400	300,849	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
7	432,000	86,400	387,596	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
8	1,641,600	1,209,600	939,462	N/A	0.32	N/A	N/A	6.48E-04	N/A	0.83	N/A	5.87E-13	N/A	N/A	12.23	N/A
9	4,060,800	2,419,200	2,716,550	N/A	0.02	N/A	N/A	4.80E-05	N/A	0.83	N/A	2.33E-15	N/A	N/A	14.63	N/A
10	7,776,000	3,715,200	5,768,861	N/A	0.04	N/A	N/A	7.20E-05	N/A	0.83	N/A	4.72E-15	N/A	N/A	14.33	N/A
													평균	9.76	12.52	10.12

* $T = \left[\frac{1}{2} (t_n^{1/2} + t_{n-1}^{1/2}) \right]^2$, $t = \sum (\Delta t)_n$

Table 54. 화학종의 침출 지수 계산(침출 시험 시편 L6)

Leach Interval		Leach Time(sec)		Released Amount (ppm)			Released ratio (released/initial)			volume/surface ratio	Effective diffusivity (cm ² /s)			Leachability Index		
		duration time (sec)	mean time of the leaching interval (sec)													
No	sec	$(\Delta t)_n$	T	a_n			a_n/A_o			V/S	$D = \pi \left[\frac{a_n/A_o}{(\Delta t)_n} \right]^2 \left[\frac{V}{S} \right]^2 T$			$Li = \log(1/Di)$		
				Co	Cs	Sr	Co	Cs	Sr		Co	Cs	Sr	Co	Cs	Sr
1	7,200	7,200	1,800	3.27E-01	0.16	N/A	2.38E-03	3.14E-04	N/A	0.83	4.29E-10	7.49E-12	N/A	9.37	11.13	N/A
2	25,200	18,000	14,835	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
3	86,400	61,200	51,231	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
4	172,800	86,400	125,894	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
5	259,200	86,400	213,818	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
6	345,600	86,400	300,849	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
7	432,000	86,400	387,596	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
8	1,641,600	1,209,600	939,462	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
9	4,060,800	2,419,200	2,716,550	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
10	7,776,000	3,715,200	5,768,861	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	0.83	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
													평균	9.37	11.13	N/A

* $T = \left[\frac{1}{2} (t_n^{1/2} + t_{n-1}^{1/2}) \right]^2$, $t = \sum (\Delta t)_n$

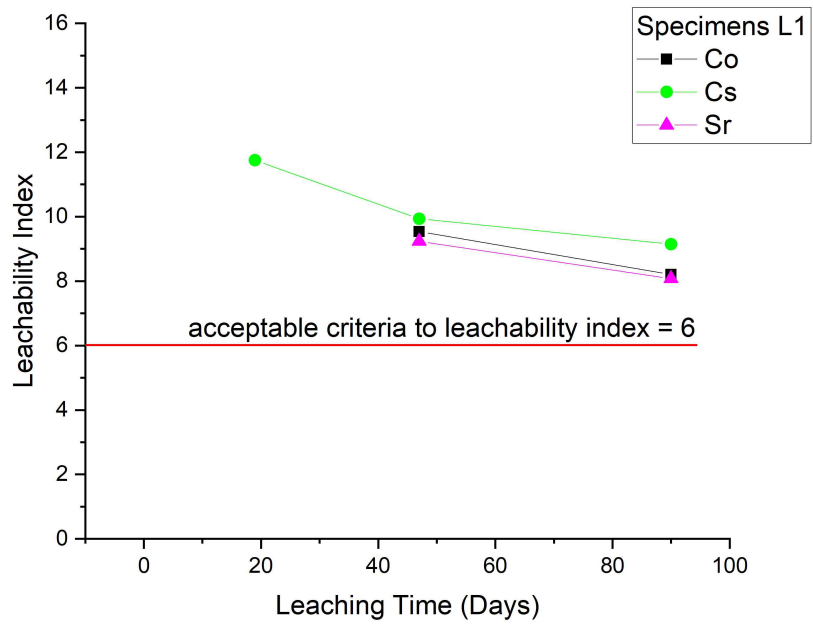


Fig. 75. ANS 16.1 침출 시험으로 산출된 침출 지수 (침출 시험 시편 L1)

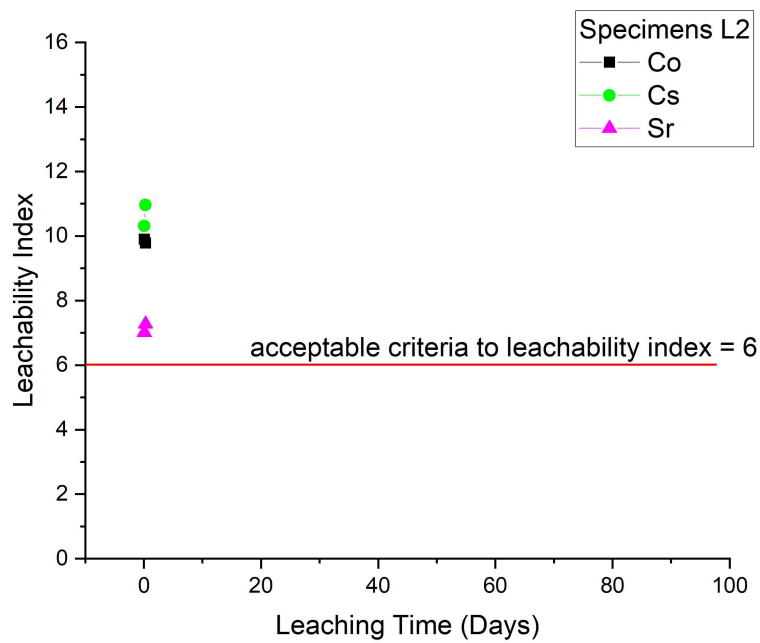


Fig. 76. ANS 16.1 침출 시험으로 산출된 침출 지수 (침출 시험 시편 L2)

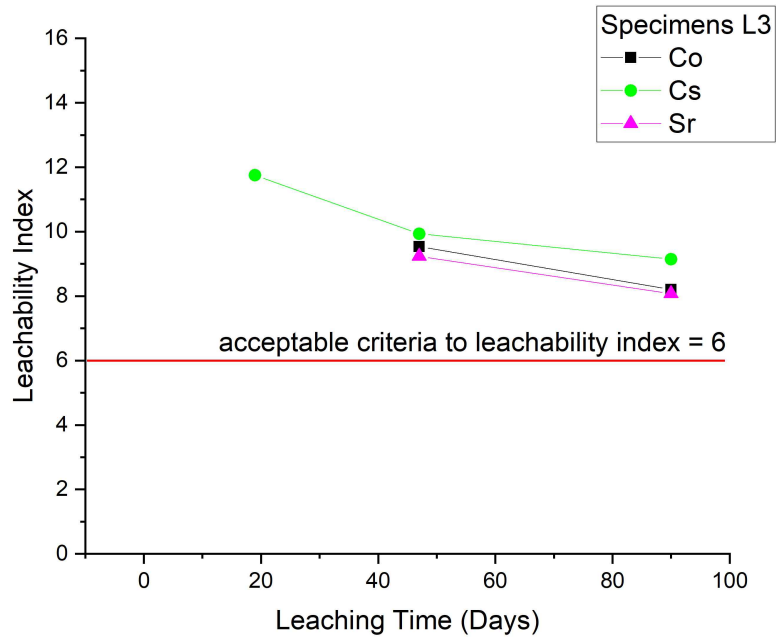


Fig. 77. ANS 16.1 침출 시험으로 산출된 침출 지수 (침출 시험 시편 L3)

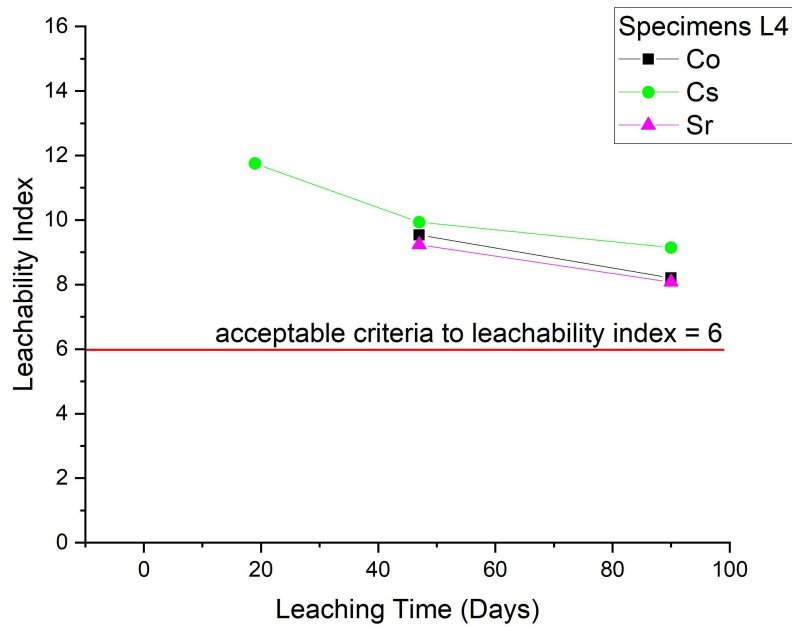


Fig. 78. ANS 16.1 침출 시험으로 산출된 침출 지수 (침출 시험 시편 L4)

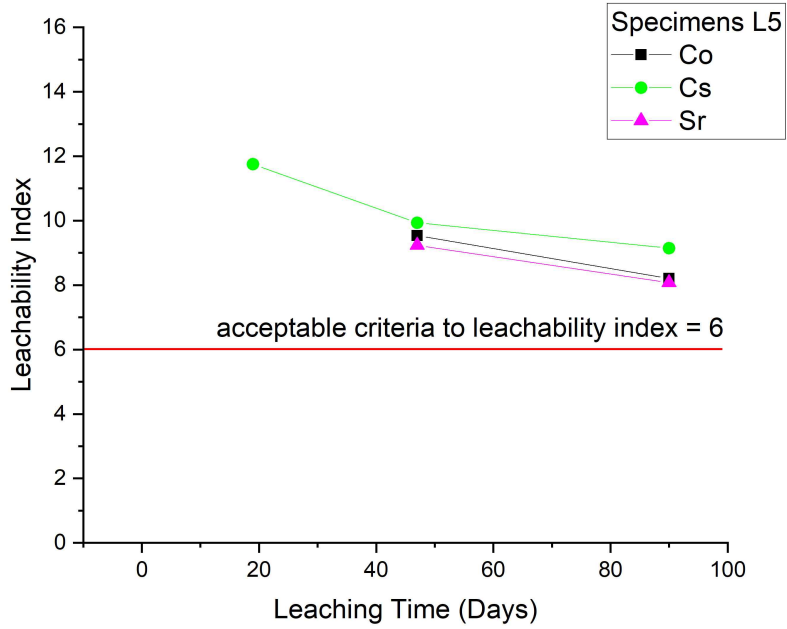


Fig. 79. ANS 16.1 침출 시험으로 산출된 침출 지수 (침출 시험 시편 L5)

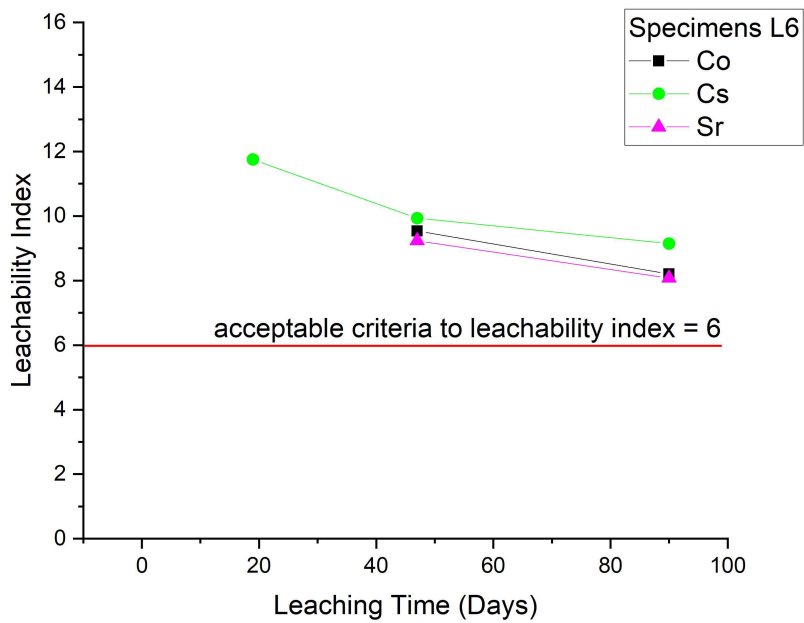


Fig. 80. ANS 16.1 침출 시험으로 산출된 침출 지수 (침출 시험 시편 L6)

제5절 처분부적합 방사성폐기물의 감용 효과 분석

1. 펠릿화에 의한 분말의 감용비 평가

토양, 콘크리트, 설프 슬러지를 펠릿으로 성형한 데이터를 이용해, 분말 기준으로 슬러지 분말과 슬러지 펠릿의 감용비를 계산한 결과에 대하여 Table 55부터 Table 57에 나타냈다. 여기서 슬러지 분말의 밀도는 압축성 평가에서 측정된 밀도 Table 19를 참고하였다.

펠릿의 부피는 설계치와 롤 갭을 1mm 하여 각각 계산하였으며, 아래 Table에서 보듯이 롤 갭이 1 mm인 경우에 분말 기준으로 슬러지의 펠릿화에 따라 계산된 감용비는 토양 슬러지의 경우 2.2 ~ 3.9, 콘크리트 슬러지는 2.5 ~ 4.4, 설프(Sump)의 경우는 2.5 ~ 3.8 의 감용비가 계산되었다.

Table 55. 토양 슬러지 펠릿의 감용비

펠릿 성형 조건			분말의 밀도 (g/cm ³)	펠릿 밀도 (g/cm ³)	감용비
Speed (rpm)	Force (kg _f /cm ²)	Feed (rpm)			
Gap = 0 mm					
0.5	290	10	1.2	3.6	3.0
		15	1.2	4.2	3.5
		20	1.2	4.6	3.8
		25	1.2	4.7	3.9
Gap = 1 mm					
0.5	290	10	1.2	2.6	2.2
		15	1.2	3.0	2.5
		20	1.2	3.4	2.8
		25	1.2	3.4	2.8

Table 56. 콘크리트 슬러지 펠렛의 감용비

펠렛 성형 조건			분말의 밀도 (g/cm ³)	펠렛 밀도 (g/cm ³)	감용비
Speed (rpm)	Force (kg _f /cm ²)	Feed (rpm)			
Gap = 0 mm					
0.5	290	10	1.0	3.5	3.5
		15	1.0	4.1	4.1
		20	1.0	4.2	4.2
		25	1.0	4.4	4.4
		30	1.0	4.1	4.1
Gap = 1 mm					
0.5	290	10	1.0	2.5	2.5
		15	1.0	3.0	3.0
		20	1.0	3.1	3.1
		25	1.0	3.2	3.2
		30	1.0	3.0	3.0

Table 57. 섬프(Sump) 슬러지 펠렛의 감용비

펠렛 성형 조건			분말의 밀도 (g/cm ³)	펠렛 밀도 (g/cm ³)	감용비
Speed (rpm)	Force (kg _f /cm ²)	Feed (rpm)			
Gap = 0 mm					
0.5	290	10	1.1	3.7	3.4
		15	1.1	4.0	3.6
		20	1.1	4.1	3.7
		25	1.1	4.2	3.8
Gap = 1 mm					
0.5	290	10	1.1	2.7	2.5
		15	1.1	2.7	2.5
		20	1.1	3.0	2.7
		25	1.1	3.1	2.8

바닥 슬러지를 펠렛으로 성형하여 분말 기준으로 슬러지 분말과 슬러지 펠렛의 감용비를 계산한 결과를 Table 58에 정리하여 나타냈다. 여기서 바닥 슬러지 분말의 밀도는 압축성 평가에서 측정한 밀도(0.7377 g/cm³)를 사용하였다. 펠렛의 부피는 설계치와를 갭을 1 mm 하여 각각 계산하였다. 그 결과, 를 갭이 1 mm인 경우에 분말 기준으로 슬러지의 펠렛화에 따라 계산된 감용비는 평균적으로 3.7의 감용비가 도출되었다.

Table 58. 바닥 슬러지 펠렛의 감용비

펠렛 성형 조건			분말의 밀도 (g/cm ³)	펠렛 밀도 (g/cm ³)	감용비
Speed (rpm)	Force (kg _f /cm ²)	Feed (rpm)			
Gap = 0 mm					
0.5	290	3	0.7	3.5	5.0
		5	0.7	3.4	4.9
		7	0.7	3.5	5.0
		9	0.7	3.7	5.3
		11	0.7	3.5	5.0
		13	0.7	3.5	5.0
Gap = 1 mm					
0.5	290	3	0.7	2.6	3.7
		5	0.7	2.5	3.6
		7	0.7	2.6	3.7
		9	0.7	2.7	3.9
		11	0.7	2.6	3.7
		13	0.7	2.6	3.7

2. 펠렛 함입 폴리머 고화체의 감용비 평가

고화체 기준으로 슬러지 분말의 감용비를 측정하기 위하여 사전에 성형 장치를 통하여 제조된 펠렛들을 에폭시 폴리머로 고형화하여 감용비를 계산하였다.

폴리머 고화체를 만들기 전에 측정된 자료와 폴리머 고화체를 가공 처리한 후의 자료를 이용하여 각 슬러지에 대한 감용비를 계산하였다. 감용비 계산은 슬러지 분말의 부피를 펠렛을 함유한 폴리머 고화체의 부피로 나누어 계산할 수가 있고, 또한 폴리머 고화체 제조를 위하여 주입된 펠렛의 무게를 주입된 분말의 무게로 나누어서 감용비를 계산할 수가 있다.

Table 59에서 Table 63번까지 각 모의 폐기물 시료를 성형하여 제조한 고화체의 재원을 정리하였으며, 시편 제조 몰드 내로 주입된 펠렛의 무게를 주입된 분말의 무게로 나누어 감용비를 산출하였다. 슬러지 분말을 펠렛으로 압축 성형하여 고형화하였을 때의 감용비(펠렛/분말의 비율)는 슬러지 종류에 따라 다르지만 대략 1.1에서 1.4 범위 내이다.

분말 슬러지를 고형화하였을 때, 최종 생성되는 폐기물의 부피는 분말 슬러지 자체의 부피보다는 작다는 의미이며, 최소 1.1, 최대 1.4 배로 부피가 줄어졌다고 분석할 수 있다. 부식 등의 슬러지의 감용비는 토양 등의 감용비보다 높는데 이는 부식 슬러지 등의 분말 입도가 매우 작아서 부피 밀도가 매우 작았기 때문으로 판단된다.

Table 59. 펠렛 성형의 감용비 평가 (토양)

펠렛 크기 (mm)	고화체 무게 (g)	고화체 부피 (cm ³)	고화체 밀도 (g/cm ³)	펠렛 무게 (g)	분말 무게 (g)	감용비
9.45	322.6	194.4	1.66	280.3	254.0	1.1
	322.5	193.3	1.67	270.1	247.1	1.1
	325.3	193.5	1.68	272.4	248.5	1.1
평균	323.4	193.7	1.67	274.2	249.8	1.1

Table 60. 펠렛 성형의 감용비 평가 (콘크리트)

펠렛 크기 (mm)	고화체 무게 (g)	고화체 부피 (cm ³)	고화체 밀도 (g/cm ³)	펠렛 무게 (g)	분말 무게 (g)	감용비
9.45	326.0	197.5	1.65	268.1	224.1	1.2
	319.8	191.5	1.67	253.8	211.2	1.2
	336.2	206.1	1.63	256.4	226.8	1.1
평균	327.3	198.3	1.65	259.4	220.7	1.2

Table 61. 펠렛 성형의 감용비 평가 (섬프(Sump))

펠렛 크기 (mm)	고화체 무게 (g)	고화체 부피 (cm ³)	고화체 밀도 (g/cm ³)	펠렛 무게 (g)	분말 무게 (g)	감용비
9.45	372.6	204.2	1.82	265.5	229.2	1.2
	370.3	199.3	1.86	266.3	226.9	1.2
	369.9	201.5	1.84	264.8	227.6	1.2
평균	370.9	201.6	1.84	265.5	227.9	1.2

Table 62. 펠렛 성형의 감용비 평가 (바닥)

펠렛 크기 (mm)	고화체 무게 (g)	고화체 부피 (cm ³)	고화체 밀도 (g/cm ³)	펠렛 무게 (g)	분말 무게 (g)	감용비
9.45	375.0	197.6	1.90	281.3	178.2	1.6
	379.9	197.0	1.93	286.8	178.8	1.6
평균	377.4	197.3	1.92	284.0	178.5	1.6

Table 63. 펠렛성형의 감용비 평가 (부식)

펠렛 크기 (mm)	고화체 무게 (g)	고화체 부피 (cm ³)	고화체 밀도 (g/cm ³)	펠렛 무게 (g)	분말 무게 (g)	감용비 (% , 분말/펠렛)
9.45	480.1	199.5	2.41	378.6	267.4	1.4

제5장 결론

본 연구에서는 중·저준위 방사성폐기물 인도 규정에서 제시하고 있는 구조적 건전성에서 폐기물 형태의 경우 분말을 성형하는 기술을 적용하여 폐기물 인수조건의 충족 여부에 대한 실험을 진행하였다. 사례 및 기술 조사한 내용을 바탕으로 분말의 성형 공정을 선정하였으며, 실험을 진행하기 위해 처분부적합 방사성폐기물의 주요 대상인 농축 폐액과 슬러지의 조성을 구현하여 모의 시료를 제조하였다. 제조한 모의 시료의 압축성을 평가하기 위해 압축성 실험을 하였으며, 성형된 분말의 건전성을 평가하기 위하여 분말의 성형 과정에서 적용되는 운전변수의 변화가 미치는 영향 등을 확인하여 분말 성형의 최적의 운전조건을 도출하였다. 또한 성형된 분말의 압축강도를 측정하여 건전성을 확인하였으며 다음과 같은 결론을 도출할 수 있었다.

1) 롤 컴팩터의 기하학적 운전 변수 및 운전 조건 등이 펠렛 성형 상태에 커다란 영향을 미치는 것을 확인하였으며, 최적의 운전조건에서 분말의 응집 첨가제를 사용하지 않아도 효과적으로 펠렛이 형성됨을 확인하였다.

2) 모의 폐기물 시료들을 이용하여 압축성 평가를 진행하였으며, 모든 시료는 초기부의 50 % 이상으로 압축이 되었으며, 벤토나이트 모의 시료가 가장 압축성이 높은 것으로 나타났다. 이는 분말을 성형하여 처리하는 경우 폐기물 인수기준에서 제시하고 있는 분말의 비분산성과 채움율의 조건을 충족할 수 있다고 판단되었다.

3) 성형된 펠렛의 건전성을 평가하기 위해 모의 폐기물 시료에서 토양과 콘크리트 시료를 이용하여 펠렛으로 성형하였으며, 롤의 회전 속도와 공급 속도에 변수를 주면서 조건별로 생성된 펠렛의 압축강도를 측정하였다. 롤의 회전속도에 따라 생성된 펠렛의 압축강도는 토양시료의 경우, 5.2 ~ 11.4 MPa의 강도가 측정되었으며, 콘크리트 시료는 7.7 ~ 15.3 MPa가 측정되었다. 공급 속도에 따라 생성된 펠렛의 압축강도는 토양 시료의 경우, 8.5 ~ 19.7 MPa, 콘크리트 시료는 17.0 ~ 28.2 MPa가 측정되었다. 생성된 펠렛들은 기본적으로 인수기준에서 제시하고 있는 최소 강도인 3.44 MPa보다 높은 강도가 측정되었으며, 각각의 운전변수에 따라 평가하였을 경우, 시료에 따라 펠렛 성형에 대한 최적의 운전 조건이 달라진다는 것을 알 수 있었다.

본 논문의 두 번째 연구로, 처분장에서 제시하고 있는 고화체 판정 기준의 충족 여부를 확인하고자 펠렛으로 성형된 방사성폐기물 모의 시료를 이용하여 고화체를 제조하여 폐기물 인수기준에서 제시하고 있는 고화체 특성 평가를 진행하였으며 다음과 같은 결

과를 도출하였다.

1) 고화 기술의 경우, 시멘트, 파라핀, 폴리머, 아스팔트 등 고화 매질에 따른 기술 분석과 문헌 조사를 통하여 폴리머 고화를 채택하였다. 고화 매질의 주제/경화제/희석제의 혼합 비율에 따라 고화체 강도가 상이하였으며, 혼합비율과 종류를 다르게 하여 폴리머 고화체를 제조하였다.

2) 1)에서 제조한 시편을 이용하여 압축강도 측정을 진행하였으며, 그 결과 최소 압축강도는 9.89 MPa, 최대 압축강도는 33.8 MPa의 결과가 측정되었으며, 인수기준에서 제시된 3.44 MPa보다 최소 3배에서 최대 10배 높은 값이며, 이는 고화체의 구조적 안전성을 충분히 만족시킨다고 판단된다.

3) NRC BTP에 근거하여 ASTM B553의 시험방법에 따라 총 30회의 열주기 순환(-30 °C ~ +60 °C) 시험을 시행한 결과, 열 순환 시험 후 고화체 시험 시편의 무게 변화율(-2.1 % ~ 0.06 %)과 부피 변화율(-2 % ~ 1.5 %)은 거의 없었으며, 고화체 시편의 부스러짐이나 균열은 발생하지 않았다. 열 순환 시험 후의 고화체 시편의 압축강도는 최소 13.7 MPa, 최대 37.4 MPa가 측정되었으며 처분장의 인수기준치인 3.44 MPa보다 훨씬 높은 보인 것으로 보아 폴리머 고화체의 처분적합성을 충족한 것으로 판단된다.

4) 침수시험은, ANS 16.1에 제시된 조건(90일간 침수, 침수액의 전도도 < 5 μ S/cm, Leachant volume/Surface area of specimen = 10 cm 등)을 고려하여 90일 동안 침수시험을 시행하였다. 침수 시험 후 고화체의 부피 변화율은 -2.8 %부터 10%의 변화가 있었으며, 무게 변화율은 -2.3 %부터 5.2%의 변화율이 발생하였다. 그리고 압축강도는 최소 8.24 MPa, 최대 35.10 MPa가 측정되었으며, 인수기준에서 제시하고 있는 3.44 MPa보다 높은 결과였다. 이러한 결과들로 보았을 때 폴리머 고화체는 매우 양호한 상태이며, 그의 제조 고화 공정도 매우 양호한 것으로 판단된다.

5) 방사선 조사시험의 경우, 방사선 고화체의 누적 흡수 선량이 106 Gy가 되도록 방사선 조사 시험을 시행한 결과, 고화체의 부피는 거의 변화가 없었으며(0.1 %), 고화체의 무게는 미세하게 감소(-0.1 %)하였지만, 외관상으로 균열, 깨짐 및 파쇄와 같은 현상은 전혀 없었다. 무게 변화의 경우, 고화체 시편을 대기에 완전히 노출된 상태로 조사하고, 조사과정에서 고화체의 온도변화가 발생하여 영향을 받은 거라고 판단된다. 방사선 조사시험 후의 고화체 시편의 압축강도는 최소 23.9 MPa, 최대 31.6 MPa가 측정되었다. 이는 처분장의 인수기준 3.44 MPa보다 높은 결과였으며, 고화체는 처분적합

성을 충족하는 것으로 판단하였다.

6) 침출 실험은 ANS 16.1에 제시된 조건(90일간 침수, 침수액의 전도도 <math>< 5 \mu\text{S}/\text{cm}</math>, leachant volume/surface area of specimen = 10 cm 등)을 고려하여 90일 동안 침출 시험을 시행하였다. 침출 시험 후 침출액의 pH는 6~8의 범위였으며, EC(Electrical conductivity)의 경우 10,500 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 이하로 측정되었으며, 이는 침출수의 기준인 10,000 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 에 해당하는 값이다. 이에 따라 폴리머 고화체는 매우 양호한 상태로 판단하였다. 그리고 침출액 교체과정에서의 침출액 내 화학종을 분석하였다. 그 결과, 평균적으로 Co는 9.6, Cs는 10.1, 그리고 Sr는 8.1.3의 침출 지수가 산출되었으며 인수 기준에서 제시하고 있는 침출 지수인 6보다 높았다.

7) 입자성 물질을 분말 상태로 폴리머 고화한 경우와 펠렛으로 성형하여 폴리머 고화하였을 경우의 감용비를 평가하였다. 펠렛으로 성형하여 고화한 경우, 분말을 고화한 경우에 비해 4.3배의 감용 효과가 발생하였으며, 이는 4.3 드럼의 분말 고화체 드럼을 분말의 성형을 통하여 한 드럼의 펠렛 고화체로 감용할 수 있다는 의미로 볼 수 있다.

본 연구에서는 처분부적합 대상으로 분류되는 방사성폐기물들의 조성을 조사하여 모의 시료를 제작하고 이를 이용하여 분말의 성형과 고화체 특성 평가를 진행하였다. 분말의 성형과정에서 사용된 모의 폐기물 시료와 실제 방사성폐기물들의 조성과의 차이로 인하여 펠렛 성형의 운전 조건이 변화될 가능성도 있으며, 장치의 성능 또한 변경해야 하는 상황이 발생할 수 있다. 또한 장치의 성능을 향상해 분말을 성형한다면 현재 진행하여 얻어진 결과보다 더욱 좋은 결과가 도출될 가능성도 있다고 판단된다.

현재의 폐기물 인수조건에서 분말 상태의 균질폐기물들의 경우, 고형화와 고정화가 의무적으로 제시되어 있다. 앞서 분말 성형을 통하여 펠렛을 제조하였을 때, 펠렛의 강도는 처분장 인수기준에서 제시한 조건을 충족하였으며, 또한 비분산성의 조건 또한 충족시켰다고 볼 수 있다. 이러한 관점으로 보았을 경우, 향후 분말 상태의 방사성폐기물들을 성형하여 고화공정을 적용하지 않고 드럼 내에 펠렛으로만 주입한다면 보다 많은 폐기물을 처분할 수 있다고 사료된다.

참고문헌

- [1] 원자력안전위원회, 원자력 안전법 제2조 제18호, (2019)
- [2] 이건재 외 5인, 중·저준위 방사성폐기물의 특성 및 분류기술 확립을 위한 연구, 한국원자력안전기술원, KINS/HR-111, (1995)
- [3] IAEA, Innovative Waste Treatment and Conditioning Technologies at Nuclear Power Plants, IAEA-TECDOC -1504, (2006)
- [4] 김창락, 원전 해체폐기물 관리 동향, 한국환경산업 기술원, 2016-138호, (2016)
- [5] 한국원자력환경공단, 중·저준위 방사성폐기물 관리 시행계획, (2018)
- [6] IAEA, Radiation Protection in Paediatric Radiology, Safety Reports Series No.71, (2012)
- [7] 한국원자력환경공단, 고형화 방사성폐기물 구조적 건전성 시험 검증, LILW-운영-방사-048
- [8] 곽경길 외 1인, 방사성농축 폐액처리·처분을 위한 신 고화 매질 개발“, 한국원자력연구원, KAERI-RR-3219, (2010)
- [9] Srinivasan Shanmugam, “Granulation techniques and technologies: recent progresses”, Bio Impacts vol. 5(1) 55-63 (2015)
- [10] J.R. Johanson, “A Rolling Theory for Granular Solids”, J. Appl. Mech., 32(4), 842-848, (1965)
- [11] Yus Aniza Yusof, Andrew C.Smithb, Brian J.Briscoe, Roll compaction of maize powder, Chemical Engineering Science 60(2005) 3919-3931
- [12] 토양오염 및 처리공학, 정명채, 한국광물자원공사, (2007)
- [13] Soil Taxonomy Second Edition, United States Department of Agriculture, (1999)
- [14] 이재완 외 1인, 우리나라 고준위폐기물처분장 기준벤토나이트완충재의 열적-수리적-역학적 특성치, KAERI/TR-3729/2009, (2009)
- [15] 황진연 외 5인, “우리 나라 황토(풍화토)의 구성광물 및 화학성분”, 한국광물학회지 제13권 제3호, pp.147 ~ 163 (2000)
- [16] IAEA, Chemistry Programme for Water Cooled Nuclear Power Plants, Specific Safety Guide No. SSG-13
- [17] 이지훈 외 3인, 원전 집수조 발생슬러지 처리연구, 한국폐기물학회지 제20권 제8호, 758-764 (2003)
- [18] NRC, 10 CFR 61, Licensing Requirements For Land Disposal Of Radioactive Waste, 61.56 Waste Characteristics (b), Available from : <https://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/cfr/part061/part061-0056.html>
- [19] K. Funabashi, F. Kawamura, M. Kikuchi and H. Yusa, “Process for Solidifying Radioactive Waste Pellets”, United States Patent, No. 4,505,851, (1985)
- [20] T. Fukasawa, M. Ohtsuka, N. Uetake and Y. Ozawa, “Method for Solidifying

- Radioactive waste”, United States Patent, No. 4,659,511 (1987)
- [21] ASTM, Test Method for Thermal Cycling of Electroplated Plastics, ASTM-B553-79 (1991)
- [22] NRC, Design Guidance For Solid Radioactive Waste Management Systems Installed In Light-Water-Cooled Nuclear Power Reactor Plants, Branch Technical Position, BTP-11-3
- [23] 정경환 외 7인, 방사성슬러리 폐기물의 시멘트 고화연구, 한국원자력연구원 (2002)
- [24] 박병철 외 5인, 원자력발전소 발생 원심분리기 모의 슬러지 유리화, 2004 방사선 방호 및 방사성폐기물에 관한 추계 심포지엄, 한국방사성폐기물학회 · 대한방사선 방어학회, 80-81 (2004)
- [25] 방사성폐기물 인수기준 및 인수검사, 원자력안전기술 정보회의, (2015)
- [26] 원자력안전위원회, 중·저준위 방사성폐기물 인도규정 (2017)
- [27] 한국원자력환경공단, 방사성폐기물 인수검사, LILW-운영-방사-028
- [28] 손종식 외 6인, 세습 침출 저항성 증진 시멘트 고화체의 제조 및 특성평가, 한국 방사성폐기물 학회지, Vol. 16(2) pp.183-193, (2018)
- [29] American Society for Testing and Materials, ‘Standard test method for thermal cycling of electroplated plastics, (1985)
- [30] American Nuclear Society, Measurement of the leachability of solidified low-level radioactive wastes by a short-term test procedure, ANSI/ANS-16.1, (2003)
- [31] A.R. Muliadi, J.D. Litster, and C.R. Wassgren, “Modeling the Powder Roll Compaction Process: Comparison of 2-D Finite Element Method and The Rolling Theory For Granular Solids (Johanson’s Model)”, Powder Technol., 221, 90-100 (2012).
- [32] C. Jensen, “The Role of Advanced Polymer Solidification in a Comprehensive Plan for Handling, Storing and Disposing of Class B & C Resins and Filters”, Proc. of EPRI International Low-Level Waste Conference, June 24-26, 2008, Orlando. Accessed Sep. 18 2018. Available from: <http://citeseerx.ist.psu.edu/viewdoc/download?doi=10.1.1.453.8167&rep=rep1&type=pdf>.
- [33] EPRI-1000006, Proceeding : Radioactive Low Level Waste Management Workshop (2000)
- [34] G. Bindhumadhavan, J.P.K. Seville, M.J. Adams, R.W. Greenwood, and S. Fitzpatrick, “Roll Compaction of a Pharmaceutical Excipient: Experimental Validation of Rolling Theory for Granular Solids”, Chem. Eng. Sci., 60(14), 3891-3897 (2005).
- [35] G. Reynolds, R. Ingale, R. Roberts, S. Kothari, and B. Gururajan, “Practical Application of Roller Compaction Process Modeling”, Comput. Chem. Eng., 34(7), 1049-1057 (2010).

- [36] H. Masuda, K. Higashitani, and H. Yoshida, Power Technology Handbook, 3rd ed., 599–613, CRC Press, New York (2006).
- [37] H.R. Karimi and S.S. Djokoto, “Instrumentation and Modeling of High-pressure Roller Crusher for Silicon Carbide Production”, Int. J. Adv. Manuf. Technol., 62(9–12), 1107–1113 (2012).
- [38] IAEA, “Disposal of Radioactive Waste”, Specific Safety Requirements No. SSR-5, (2011)
- [39] IAEA, Considerations for Waste Minimization at the Design Stage of Nuclear Facilities, IAEA TR No. 460, (2007)
- [40] J. S. Song, S. H. Lim, M. Y. Jung and K. H. Kim, “A Study on the Pelletization of Powdered Radioactive Waste by Roll Compaction” JNFCWT (Journal of Nuclear Fuel Cycle and Waste Technology) Vol.17, No.2, pp203–212, (2019)
- [41] K. Funabashi, F. Kawamura, M. Kikuchi and H. Yusa, “Process for Solidifying Radioactive Waste Pellets”, United States Patent, Appl. No. 381,292, (1985)
- [42] Korean Agency for Technology and Standards, ‘Standard test method for compressive strength of concrete, KS F 2405, (2010)
- [43] NRC, Waste Form Technical Position, Revision 1, NRC ML033630746, (1991)
- [44] NRC, Technical Position on Waste Form, Rev.1, (1991)
- [45] PNNL-20632, Waste Acceptance Testing of Secondary Waste Forms: Cast Stone, Ceramicrete and DuraLith, (2011)
- [46] S.H. Hsu, G.V. Reklaitis, and V. Venkatasubramanian, “Modeling and Control of Roller Compaction for Pharmaceutical Manufacturing. Part I: Process Dynamics and Control Framework”, J. Pharm. Innov., 5(1–2), 14–23 (2010).
- [47] Solid Radioactive Waste Processing Systems, Westinghouse Technology Systems Manual Section 15.2
- [48] T. Fukasawa, M. Ohtsuka, N. Uetake and Y. Ozawa, “Method for Solidifying Radioactive Waste”, United States Patent, Appl. No. 697,581, (1987)
- [49] Y.A. Yusof, A.C. Smith, and B.J. Briscoe, “Roll Compaction of Maize Powder”, Chem. Eng. Sci., 60(14), 3919–3931 (2005).

감사의 글

석사를 졸업하고 박사과정의 진학이 엇그제 같은데 어느덧 저는 졸업 하여 사회로 나가야 하는 시간이 되었습니다. 지난 시간을 되돌아보니 제 자신에게 만족했던 시간 보다 무언가 아쉬운 마음이 더 많이 생각나는 건 왜인지 모르겠습니다. 지금의 제가 있기 까지 많은 분의 도움과 관심이 있었기에 감사한 마음을 담아 작게나마 글로써 남겨보자 합니다.

먼저, 부족한 저를 제자로 받아주시고 지난 10년 동안 많은 가르침을 주신 송종순 교수님께 감사하다는 말씀을 드리고 싶습니다. 교수님의 격려와 조언으로 지금의 자리까지 오게 된 거 같습니다. 교수님의 가르침을 잊지 않고 앞으로 더욱 노력하여 부끄럽지 않은 제자가 되도록 하겠습니다. 또한, 졸업을 준비하는 동안 다양한 지식과 가르침을 주신 김기홍 박사님과 정운관 교수님, 이경진 교수님, 나만균 교수님, 김진원 교수님, 김종현 교수님께도 감사의 말씀 드립니다.

그동안 함께 지낸 핵주기실험실 가족들에게 고맙다는 말을 하고 싶습니다. 항상 저에게 많은 조언을 해주는 상현이 형, 배울 점이 많은 선일이, 항상 노력하는 학윤이와 기태, 그리고 많은 시간을 함께하지 못하였지만, 항상 웃는 우리 막내 준열이에게 고맙다는 마음을 전하고 싶습니다. 특히, 실험실에 들어오자마자 정신없이 2년이란 시간을 저와 함께 지낸 상현이에게 항상 감사하다고 말하고 싶습니다.

학부 시절부터 지금까지 다양한 멘토를 해준 경원이형, 동혁이형, 진행이형, 10년이 지나도 항상 엔돌핀이 넘치는 09 후배들, 연락을 많이 못 해도 항상 반겨주는 산수동 친구들과 윤우회 친구들, 그 외에도 미처 언급하지 못한 많은 분들에게 감사하다는 말을 전하고 싶습니다..

무엇보다 저에게 가장 소중한 부모님과 하나밖에 없는 동생 법우에게 감사하다는 말을 끝으로 글을 마치려고 합니다.

이제는 또 다른 시작을 준비할 때인 거 같습니다. 많은 것이 부족하고 생소하지만, 그동안의 배움을 양분 삼아 좋은 모습으로 나아가도록 하겠습니다.

감사합니다.