



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](#)

2023년 8월
박사학위 논문

방사성폐기물 분말 처분을 위한
펠릿화 및 고품화 특성에 관한 연구

조선대학교 대학원

원자력공학과

임상현

방사성폐기물 분말 처분을 위한 펠릿화 및 고형화 특성에 관한 연구

A study on the pelletization and solidification characteristic
of radioactive wastes powdered for disposal

2023년 8월 25일

조선대학교 대학원

원자력공학과

임상현

방사성폐기물 분말 처분을 위한 펠릿화 및 고형화 특성에 관한 연구

지도교수 송 종 순

이 논문을 공학 박사학위신청 논문으로 제출함

2023년 4월

조선대학교 대학원

원 자 력 공 학 과

임 상 현

임상현의 박사학위논문을 인준함

위원장	조선대학교	교수	<u>이경진 (인)</u>
위원	조선대학교	교수	<u>송종순 (인)</u>
위원	조선대학교	교수	<u>공태영 (인)</u>
위원	(주)라드인	박사	<u>김기홍 (인)</u>
위원	(주)원전해체연구소	박사	<u>최영구 (인)</u>

2023 년 6 월

조선대학교 대학원

목 차

ABSTRACT	XI
제1장 서론	1
제1절 연구배경	1
제2장 이론적 배경	4
제1절 처분부적합 방사성폐기물 처리 및 처분	4
1. 처분부적합 방사성폐기물의 정의 및 발생원	4
2. 방사성폐기물 처분규정 및 인수조건	14
제2절 방사성폐기물의 고형화 (Solidification) 기술	23
1. 방사성폐기물의 고형화 기술 현황	23
2. 기존 고형화 기술의 문제점 및 개선방안	26
제3절 방사성폐기물의 펠릿화 (Pelletization) 기술	29
1. 방사성폐기물의 펠릿화 기술 현황	29
2. 기존 펠릿화 기술의 문제점 및 개선방안	36
제3장 방사성폐기물 분말의 펠릿화 평가	39
제1절 모의 폐기물 시료의 물리·화학적 특성	39
1. 모의 시료의 조성	39
2. 모의 시료의 밀도 및 수분함유도	40
3. 모의 시료의 입자 크기	40
4. 모의 시료의 입자 형태	41
5. 모의 시료의 물리·화학적 특성 분석	43
제2절 모의 폐기물 시료의 펠릿화 실험	44
1. 펠릿화 장치의 구성	44
2. 모의 시료의 압축성 평가실험	46
3. 모의 시료의 펠릿화 평가실험	47

제3절 모의 폐기물 시료의 펠렛화 실험결과 및 분석	48
1. 모의 시료의 압축성 실험결과 및 평가	48
2. 모의 시료의 펠렛화 실험결과 및 평가	49
제4장 방사성폐기물 고화체의 특성평가	58
제1절 폴리머 고화체의 주요 특성 및 시편 제작	58
1. 폴리머 고화체의 특성	58
2. 펠렛의 폴리머 고화 실험	60
3. 폴리머 고화 시편 제조	75
제2절 폴리머 고화체의 특성평가	77
1. 압축강도 시험	77
2. 열 순환 시험	78
3. 방사선조사 시험	79
4. 침수 시험	80
5. 침출 시험	82
제3절 폴리머 고화체의 특성평가 결과 및 분석	84
1. 압축강도 특성	84
2. 열 순환 특성	85
3. 방사선조사 특성	87
4. 침수 특성	88
5. 침출 특성	90
제4절 방사성폐기물의 감용 효과 분석	96
1. 방사성폐기물 감용 효과 분석 방법	96
2. 모의 분말시료의 감용비 평가	97
3. 폴리머 고화체의 감용비 평가	98
제5장 결론	99
참고문헌	101

표 목차

표 1. 원자력발전소별 농축폐액의 처리방법	8
표 2. 고리1호기의 해체전략에 따른 토양오염 폐기물 발생량 예상 [Unit : ft ³]	10
표 3. Bio-shield 콘크리트의 주요 방사성 핵종별 방사능 [Unit : Bq]	11
표 4. SONGS 1 Radioactive Low Level Waste Disposal Volumes [Unit : ft ³]	12
표 5. 폐기물 저장 현황 (2019, 3분기 기준) - [Unit : 200L 드럼]	13
표 6. IAEA 폐기물 특성분류 및 주요 사항	16
표 7. 국내 폐기물 인수기준(Waste Acceptance Criteria, WAC)의 항목별 분류 조건 ..	17
표 8. 저준위방사성폐기물의 방사능 농도 제한치 [Unit : Bq/g]	18
표 9. 폐기물 고화체 시편에 대한 시험 기준	22
표 10. 처분 안전성 확인을 위한 폐기물 고화체의 시험 항목별 판정기준	22
표 11. 방사성폐기물 고화기술 및 기술 특성	27
표 12. 롤 컴팩션의 매개 변수별 영향인자	34
표 13. 미국 농무부(USDA)에서 제시하는 토양의 입도 크기 분류 [Unit : mm]	35
표 14. 모의 시료의 무기화학 조성 [Unit : w.t.%]	39
표 15. 모의 시료별 평균 입자 크기 및 누적 분포율 [Unit : μm]	41
표 16. 롤 컴팩터(roll compactor)의 사양	44
표 17. Comparison of the compressibility of waste powder	48
표 18. 고밀도 강성 펠렛의 압축강도 측정 결과	56
표 19. Advantages of Polymer-Solidification Process	59
표 20. LGE 비율 변화에 따른 폴리머 YD-128의 점도 - 25 RPM 기준 [Unit : cps] ..	62
표 21. 고화매질 선정을 위한 각종 폴리머 구성물의 혼합비율 [Unit : w.t.%]	64
표 22. Acceptable Criteria of polymer-solidified body	76
표 23. Specification of polymer-solidified body for leaching test	91
표 24. Initial concentration of chemical species [Unit : mg]	92
표 25. Evaluation result of powder - based volume reduction ratio	97
표 26. Evaluation result of polymer waste form - based volume reduction ratio ..	98

그림 목차

그림 1. 가압경수로(PWR)에서의 방사성폐기물 발생원	7
그림 2. IAEA 방사성폐기물 분류체계의 개략도	14
그림 3. 국내의 방사성폐기물 분류체계의 변화 및 처분방법	15
그림 4. 방사성폐기물 고화 기술의 종류	24
그림 5. 중·저준위방사성 폐기물의 처리/처분에 대한 기존 고형화 기술의 문제점 ..	28
그림 6. Schematic diagram of tablet compression techniques	30
그림 7. 롤 컴팩션의 개념도 및 Johanson 모델의 영역 구분	32
그림 8. Johanson의 롤 컴팩션 이론에서 θ 각도에 따른 영역 구분	34
그림 9. 펠렛화의 활용 방안 및 HIC 용기에 대한 적용	38
그림 10. 모의 시료별 입자 크기 분포 - (a) 누적 분포 (Q3) [Unit : %], (b) 밀도 분포 (q3) [Unit : %/ μm]	41
그림 11. 모의 시료의 SEM 촬영 이미지 - (a) 토양, (b) 콘크리트, (c) 농축폐액	42
그림 12. 특성 분석 시 사용된 모의 시료의 모습	43
그림 13. 사용된 롤 컴팩터(roll compactor)의 실제 모습	45
그림 14. 롤 컴팩터(roll compactor)의 세부 사항	45
그림 15. 모의 시료의 압축성 평가를 위한 일축 압축기(uniaxial compressor)의 개념과 원통형 틀(cylindrical stainless steel die)	46
그림 16. Process for surface treatment of pellet - (a) Manufactured jig, (b) Pellets between jigs, (c) Compressive strength sample	47
그림 17. 압축성 평가로 얻어진 원통형 분말체의 형상	48
그림 18. 응집압력(Agglomeration Pressure) 변화에 따른 제조된 펠렛의 모습	50
그림 19. 롤 컴팩터에 부착된 LVDT 와 Encoder	51
그림 20. 롤 회전 각도에 따른 두 롤 사이의 간격 변화 - (a) roll speed, (b) feeding rate [Unit : $\times 10^{-1}$ mm]	51
그림 21. 롤 회전속도(roll speed)에 따른 펠렛의 밀도 변화 - 토양, 콘크리트 [Unit : $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$]	52
그림 22. 롤 컴팩터의 운전변수에 따른 단위 시간당 생산된 펠렛의 성형량 - (a) roll Speed, (b) feeding Rate [Unit : kg/hr]	53
그림 23. 분말 주입속도(feeding rate)에 따른 펠렛의 밀도 변화 - 토양, 콘크리트	

	[Unit : $g \cdot cm^{-3}$]	54
그림 24.	펠렛(Pellet) 제조 전과 후의 모습 - (a) 모의 시료별 분말, (b) 모의 시료별 성형 압축된 펠렛	55
그림 25.	펠렛화 조건 실험을 통해 제조된 펠렛의 실제 모습 - (a) Change in roll speed (R.S.: 1.5 ~ 4.0 rpm), (b) Change in feeding rate (F.R.: 10 ~ 35 rpm)	57
그림 26.	LGE 비율 변화에 따른 폴리머 주제의 점도 - 30 RPM 기준 [Unit : cps]	62
그림 27.	LGE 비율 변화에 따른 폴리머 경화제의 점도 - 30 RPM 기준 [Unit : cps] ..	63
그림 28.	사전 특성평가에 사용된 고화체 시편 (007, 008, 009, 010)	65
그림 29.	LGE 혼합비율 및 경화 온도별 제조된 폴리머 고화체의 모습	66
그림 30.	LGE 혼합비율 및 경화 온도별 제조된 폴리머 고화체의 압축강도 측정 후의 모습	67
그림 31.	LGE 혼합비율별 제조된 폴리머 고화체의 압축강도 측정 결과 - 상온 경화 [Unit : MPa]	68
그림 32.	LGE 혼합비율별 제조된 폴리머 고화체의 압축강도 측정 결과 - 50 °C 경화 [Unit : MPa]	68
그림 33.	LGE 혼합비율별 제조된 폴리머 고화체의 압축강도 측정 결과 - 60 °C 경화 [Unit : MPa]	69
그림 34.	LGE 혼합비율별 제조된 폴리머 고화체의 압축강도 측정 결과 - 75 °C 경화 [Unit : MPa]	69
그림 35.	성형 펠렛의 폴리머 고화 과정과 장치의 개념도	70
그림 36.	경화 온도 변화에 따른 펠렛 폴리머 고화체의 압축강도 측정 후의 모습	71
그림 37.	경화 온도 변화에 따른 펠렛 폴리머 고화체의 압축강도 측정 결과 [Unit : $kg_f \cdot cm^{-2}$]	72
그림 38.	펠렛의 폴리머 고화체의 경화 시 발열온도 측정 - 상온 경화 [Unit : °C]	73
그림 39.	펠렛의 폴리머 고화체의 경화 시 발열온도 측정 - 50 °C 경화 [Unit : °C]	74
그림 40.	펠렛의 폴리머 고화체의 경화 시 발열온도 측정 - 60 °C 경화 [Unit : °C]	74
그림 41.	펠렛이 함유된 폴리머 고화체 제조방법 및 개념도	75
그림 42.	제조된 펠렛 폴리머 고화체 시험 시편 - (a) 특성평가용, (b) 침출시험용 ..	76

그림 43. 제조된 폴리머 고화체의 방사선조사 시험 모습 80
 그림 44. 설계된 PTFE 침수 용기의 구성 - (a) 침수 용기 및 고화체 지지대의 채원,
 (b) 침수 용기의 개념도 80
 그림 45. 침수용 시편 모습과 침수 시험 수행과정 81
 그림 46. 설계된 PTFE 침출 용기의 구성 - (a) 침출 용기 및 고화체 지지대의 채원,
 (b) 침출 용기의 개념도 82
 그림 47. 침출용 시편의 모습과 침출 시험 수행과정 83
 그림 48. Appearance of polymer solidified body(Solidified sample prepared
 before characterization test) 84
 그림 49. Appearance of polymer solidified body(Compressive strength test) ... 85
 그림 50. Upper and lower temperature limit of thermal cycling test
 (1 cycle, 24 hours) 86
 그림 51. Appearance of polymer solidified body(Thermal cycling test) 87
 그림 52. pAppearance of polymer solidified body(Irradiation test) 88
 그림 53. Appearance of polymer solidified body(Immersion test) 89
 그림 54. Appearance of polymer solidified body(Leaching test) 92
 그림 55. pH and EC with a leaching time - Specimen with soil pellets
 [Unit : pH, $\mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$] 93
 그림 56. pH and EC with a leaching time - Specimen with concrete pellets
 [Unit : pH, $\mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$] 94
 그림 57. pH and EC with a leaching time - Specimen with concentrated waste
 pellets [Unit : pH, $\mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$] 94
 그림 58. Comparative analysis of leachability index (L_i) with the leaching time ... 95

ABSTRACT

A study on the pelletization and solidification characteristic of powdered radioactive wastes for disposal

Lime SangHyun

Advisor : Prof. Song Jong Soon, Ph.D.

Department of Nuclear Engineering,

Graduate School of Chosun University

In general, the radioactive wastes (liquid, dried powder and sludge) have been solidified by mixing with a proper binding matrix (cement, polymer, asphalt, etc.), but their final solidified volume inevitably increases due to the limitation of incorporation of radioactive wastes to a binding matrix. So to increase a volume reduction and to save the disposal cost of the final waste forms, we studied a roll compaction process with powdered waste (soil, crushed concrete, decon. sludge). Firstly, we manufactured a lab-scale roll compactor attached a device (LVDT, Encoder, Data Processing Program) to measure a roll gap during compaction procedure. We compacted powdered wastes as small pellets (H 6.5 x W 9.4 mm) according to the change of process parameters (hydraulic pressure, roll speed, roll speed), and then solidified them with an epoxy resin. Previously, the compressibility and moisture contents of powdered wastes were evaluated. We found the compaction conditions, greatly, depend on the particle size and the compositions of inorganic materials (especially, ferrite, etc.). The strength of those compacted pellets were 5.2 ~ 28 MPa, the volume reduction ratio of that on the basis of powder were 2.72 ~ 3.39. The characterization of the solidified waste forms by using an epoxy was carried out. Their compressive strength were 25.50 ~ 28.20 MPa, and their volume reduction ratio were 1.15 ~ 1.49. And the leach index (ANS 16.1) for Co, Cs and Sr were 12.69 ~ 17.36 in the epoxy waste forms due to the hydrophobic and adhesive properties. Finally, we ensured the possibility of a roll compaction system for reducing the volume of powdered and particulate radioactive wastes, will be very effective for reducing the waste-disposal cost.

제 1장. 서론

제 1절. 연구 배경

중·저준위 방사성폐기물 중 분산 특성을 갖는 분말 방사성폐기물을 영구 처분하기 위해서는 반드시 처분하기 적합한 형태가 되도록 처리하여 포장되어야 한다 [1]. 일반적으로 입자성/분산성의 분말 방사성폐기물을 안정화하기 위해 시멘트, 아스팔트, 유리화, 폴리머와 같은 고화 방법을 사용하고 있다[2]. 하지만 아스팔트와 시멘트 고화처리의 경우, 폐기물과 고화 매질을 균질하게 혼합해 고화하는 방식이기 때문에 최종 처분되는 방사성 고화체의 부피가 증가하는 문제가 필연적으로 발생한다[3]. 이러한 문제점을 포함하여, 현시점에서 기존 고화방식에 대한 문제점을 다음과 같이 정리할 수 있다. 첫째, 기존 고화방식으로 방사성폐기물을 고화할 경우, 최종 폐기물 고화체의 부피가 초기 폐기물의 부피보다 수 배 이상 증가한다. 둘째, 농축폐액 건조 분말이 함유된 파라핀 고화체의 경우, 구조적 건전성이 확보되지 못하여 핵종 누출에 대한 우려가 있다. 셋째, CTS(Concentrates Treatment System)를 통해 형성된 과립물(Granules)은 입도 분포가 매우 넓으며, 이러한 이유로 리머 고화가 용이치 못하다. 즉, 이러한 문제점들을 고려하여 볼 때 분말 형태의 폐기물을 부피가 증가하지 않으면서도 처분장에 처분할 수 있는 기술개발과 연구가 시급한 실정이다.

그러므로, 상기와 같은 문제점을 이유로 처분장 인수기준을 충족하지 못하며, 인수검사 과정에서 부적합 판정을 받은 폐기물들은 처분부적합 방사성폐기물로 분류될 수 있다. 이는 자체처분이 불가능하며, 처리기술 미확보로 인해 처리 및 처분하지 못한 방사성폐기물인 것이다. 따라서 본 연구에서는 처분부적합 방사성폐기물을 대상으로 하며, 이들 중 원자력발전소 해체과정에서 발생하는 미세 입자들로 구성된 오염 토양(Soil), 폐콘크리트 파쇄물(Spent concrete) 그리고 원전운영시 발생하는 농축폐액의 건조 분말(Decon. sludge)로 선정하였다.

앞서 선정한 대상 폐기물들은 입자성/분산성의 분말 방사성폐기물이기 때문에 유동 및 분산 특성을 갖는다. 이들 방사성폐기물은 폐기물 인수기준(Waste Acceptance Criteria, WAC)에서 요구하는 바와 같이 비분산성이 되도록 안정화

(Stabilization)하거나, 구조적 건전성을 유지하면서 핵종 누출이 되지 않도록 고형화(Solidification)하여야 한다. 이때 최종 방사성 고화체의 부피 증가와 같은 기존의 문제를 해결하고, 구조적 건전성을 확보할 수 있는 고화체를 제조할 필요성이 있다. 따라서 본 논문에서는 CWDS(Concentrate Waste Drying system)를 통해 건조된 농축폐액 분말을 파라핀(Paraffin)과 혼합하는 ‘파라핀 고화 공정’ 과 CTS를 통해 건조 및 과립물(Granules)로 형성하고, 이를 에폭시 수지로 경화하는 ‘폴리머(Epoxy Resin) 고화 공정’의 장점들을 극대화하고자 한다. 따라서 이를 활용하기 위해 분말의 펠렛화를 통한 폴리머 고화 공정을 연구하였다.

펠렛화를 통한 폴리머 고화 공정은 입자성/분산성의 분말 방사성폐기물을 압축 성형을 통해 고밀도의 펠렛으로 펠렛화(Pelletization) 시키고, 이를 고정착성의 에폭시 수지인 폴리머로 고형화(Solidification)하는 방법이다. 즉, 드럼과 같은 처분용기 내에 펠렛을 충전 시키고, 이들 펠렛 사이 공극에 고정착성(고강도)의 폴리머를 주입해 고화시킬 수 있다. 이 경우에는 부피 증가가 발생하지 않으며, 오히려 최종 처분되는 방사성폐기물 고화체의 부피를 감용시킬 수 있다.

한편, 분말 폐기물의 효과적인 폴리머 고화를 위해서는 전처리 단계로 분말의 부피를 감용 시키는 펠렛화가 우선되어야 한다. 이를 위해 입자성 미세 분말을 펠렛으로 성형하기 위하여 롤 컴팩션(Roll Compaction) 기술을 선정하였다[4]. 롤 컴팩션을 위한 롤의 설계와 운전을 위하여, Johanson이 제시한 롤 컴팩션 과정에서 물질의 거동 영역에 수학적 모델을 적용하였다[5]. 그리고 펠렛 성형 분야에서 다양하게 제시된 롤 크기, 장치의 운전변수들, 분말 물질의 특성(Isotropic, Cohesive, Compressible)에 대한 많은 수학적 모델을 참고하였다[6]. 상기 모델로부터 롤의 두께와 지름, 잘림 각도(Nip angle), 롤에 가하는 압력을 계산해 롤 컴팩션 시스템을 설계/제작하여 사용하였다.

본 연구에서는 처분부적합 방사성폐기물 중 대상 폐기물로 선정된 분말 입자를 채취(토양, 콘크리트) 또는 제조(농축폐액분말)하여 사용하였다. 준비된 분말상의 모의 시료는 무기화학 조성, 밀도 및 수분함유도, 입자 크기, 입자 형태 등을 통해 물리·화학적 특성 분석 및 압축성을 평가하였다. 그리고 제작된 롤 컴팩터(roll compactor)의 롤 지름과 두께 그리고 잘림 각도를 일정하게 하고, 운전 변수(Hydraulic pressure, roll speed, feeding speed)를 변화시켜 성형 펠렛을 제조하

였다. 이때 모의 시료 및 운전변수별 제조된 펠렛의 상태를 확인하기 위해 밀도(또는 무게)와 압축강도를 측정하였다. 이때 펠렛이 얼마나 고밀도 및 고강도로 제조되었는지에 따라 펠렛화에 따른 부피감용 정도를 확인할 수 있다[7]. 즉, 각 시료별 제조된 펠렛에 대하여 압축강도, 감용비 평가를 수행하였다.

이어서 성형 압축된 펠렛을 실험실 규모의 용기(길이=10cm, 지름=5cm)에 충전해 에폭시 폴리머로 고형화 처리를 수행하였다. 이때 폴리머 구성물의 점도 측정, 폴리머 구성물의 혼합비율, 경화 온도에 따른 고화체의 압축강도 측정 실험을 통해 최적의 고화 조건을 선정하였다. 최종 생산된 고화체의 성능이 미국 원자력규제위원회 (Nuclear Regulatory Commission U.S., USNRC)의 Technical Position on Waste Form, Rev.1, 1991 [8] 규정에 부합되는지 확인하였다. 즉, 상기 규정에서 제시된 압축강도 시험, 열순환 시험, 방사선조사 시험, 침수 및 침출 시험을 수행하였다. 특성시험의 결과를 바탕으로 분말의 펠렛화 및 폴리머 고화체의 적합성을 종합적으로 평가하였다.

제 2장 . 이론적 배경

제 1절 . 처분부적합 방사성폐기물 처리 및 처분

1. 처분부적합 방사성폐기물의 정의 및 발생원

가. 처분부적합 방사성폐기물의 정의

처분부적합 방사성폐기물은 처분장 인수기준 요건에 미충족, 미규정 된 방사성폐기물, 그리고 인수검사 시설에서 안전성 등 정밀 인수검사 시 부적합한 폐기물로 판정되어 인수 및 처분이 거부된 방사성폐기물들로 정의할 수 있다. 한편 정민영(2020)은 「Pellet 화를 적용한 처분부적합 방사성폐기물 고화 공정 최적화 연구」에서 처분부적합 방사성폐기물은 넓은 의미로는 “처분장의 인수기준에 규정되어 있지 않거나, 처분장 인수기준을 충족시키지 못하거나, 또는 인수검사 과정에서 불만족한 판정을 받은 방사성폐기물 들로 정의할 수 있다고 판단된다.” 라고 언급하고 있으며, 좁은 의미로는 “발생한 자체로는 처분이 불가능 하면서 또한 처리기술의 미확보로 인하여 처리되지 못한 상태의 방사성폐기물로 정의할 수가 있다.” 라고 처분부적합 방사성폐기물에 대하여 정의 한 바에 있다[9].

대표적인 처분 부적합 방사성폐기물은 방사성을 가지는 유해성 폐기물로서 혼합 폐기물(Mixed waste)이 있으며, 입자성(Particulate)/분산성(Dispersibility)의 분말 방사성폐기물 등이 있다. 특히 입자성/분산성의 분말 방사성폐기물은 유동 및 분산 특성을 갖기 때문에, 이들은 폐기물 인수기준(Waste Acceptance Criteria, WAC)에서 요구하는 바와 같이 비분산성이 되도록 안정화(Stabilization)하거나, 구조적 건전성을 유지하면서 핵종 누출이 되지 않도록 고형화(Solidification)하여야 한다. 하지만 분말 방사성폐기물은 벌크 밀도(bulk density)가 낮고 표면적이 매우 넓다. 그러므로 기존 고화방식으로 이들을 단순 고화 처리할 경우, 최종 폐기물 고화체의 부피가 초기 폐기물의 부피보다 수 배 이상 증가하는 문제점을 필연적으로 가지고 있다.

이들 폐기물은 국내 원자력안전위원회(이하 원안위)에서 고시한 「방사성폐기물 분류 및 자체처분 기준에 관한 규정(원안위고시 제 2020-6 호)에서는 방사능 준위가 저준위 이상일 경우에는 고화처리, 극저준위인 경우에는 안정화를 도모할 필요가 있다」라고 언급하고 있다[10]. 또한, 국내 방사성폐기물의 분류는 과거 고준위 방사성폐기물과, 중·저준위 방사성폐기물로서 크게 2 단계로 구분하고 있었다. 하지만 2009년 국제원자력기구(International Atomic Energy Agency, IAEA)에서 방사성폐기물 분류체계를 도입하여, 고준위, 중준위, 저준위 및 극 저준위로서 총 4 단계로 분류하고 있다. 따라서 본 연구내용에서는 대상 폐기물로 선정된 원자력발전소(이하 원전) 해체과정에서 발생하는 미세 입자들인 오염 토양(Soil), 폐콘크리트 파쇄물(Spent concrete) 그리고 원전운영 시 발생하는 농축폐액의 건조 분말(Decon. sludge)로 선정하였다. 하지만 이들 방사성폐기물 중 방사능 준위가 자체처분 허용농도 이하인 경우는 고려하지 않고 제외하였다.

나. 처분부적합 방사성폐기물의 발생원

전반적으로 원자력발전소 운영 시 발생하는 대부분의 방사성물질은 핵분열, 방사화 정도, 핵연료, 냉각재, 그리고 구성요소에 따라 다양한 종류 및 형태로 형성된다. 한편 한국원자력안전기술원(1995)은 「중·저준위 방사성폐기물의 특성 및 분류기술 확립을 위한 연구」에서 “정상적인 운전조건 하에서는 적은 양의 핵분열 생성물(0.1 %)이 핵연료 피폭재의 파손에 의해서 냉각재로 유출되는데 이는 냉각재와 직접 접촉하고 있는 우라늄으로 인한 것”이며, “소위 ‘Tramp’ 우라늄이라 불리는 물질이 냉각재로 직접 핵분열생성물을 방출한다고 알려져 있다.”라고 언급했다. 그리고 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 방사성물질은 원자로 냉각 계통 내에 있게 되고 방사성물질 제거의 중요한 방법으로는 필터, 수지, 그리고 증발기 등에 의한다. 이들을 완전히 물리 화학적으로 제거하기는 어렵고, 또한 1차 계통을 순환하는 방사성물질 중 일부는 원자로 냉각 계통 경계를 통과하여 시스템 외부로 유출되는 문제가 발생한다. 이러한 과정에서 유출된 물질로부터 기체

방사성폐기물과 액체 방사성폐기물이 발생되며, 이어서 원자로는 “기체, 액체 방사성폐기물을 적당한 준위로 감소시켜 외부로 유출하는 시스템을 가지고 있다. 기체 및 액체 방사성폐기물을 처리하는 과정에서 폐필터, 폐수지, 증발기 농축폐액, 건식 폐기물 등의 고체폐기물이 생성된다” 라고 언급했다[11].

(1) 원전운영 방사성폐기물

원전운영 방사성폐기물은 주로 핵연료의 붕괴와 원전운영 시 발생하는 폐기물로 구분할 수 있다. 즉, 핵연료의 붕괴 시 생성된 중성자와 감마선에 의해 방사화된 폐기물로서, 고준위 및 중준위방사성폐기물(원자로 및 원자로 내부지지대 등)이 발생한다. 그리고 원전운영과 더불어 잡고체, 농축폐액, 폐수지, 폐필터 등은 중·저준위 방사성폐기물이 주로 발생한다. 그리고 원전에서 발생하는 방사성폐기물은 그 형태에 따라 기체, 액체 및 고체폐기물로 나눌 수 있으며, 국내 대부분을 차지하는 가압경수로형(PWR) 방사성폐기물의 발생원을 구분하면 그림 1과 같다. 이때 방사성폐기물 중 액체폐기물의 경우 발생원에 따라 함유된 핵종과 발생량은 달라질 수 있으며, 발전소설계 및 운전조건 등에 영향을 받는다.

- 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 액체 폐기물(Processes liquid waste)
- 화학폐기물(Chemical waste)과 복수탈염기 재생계통(Condensate demineralizer regeneration system)에서 방출되는 공정액체폐기물
- 터빈 건물의 바닥 배수(Turbin building floor drain sump)에서 발생하는 액체폐기물, 세정폐기물(Detergent waste), 등

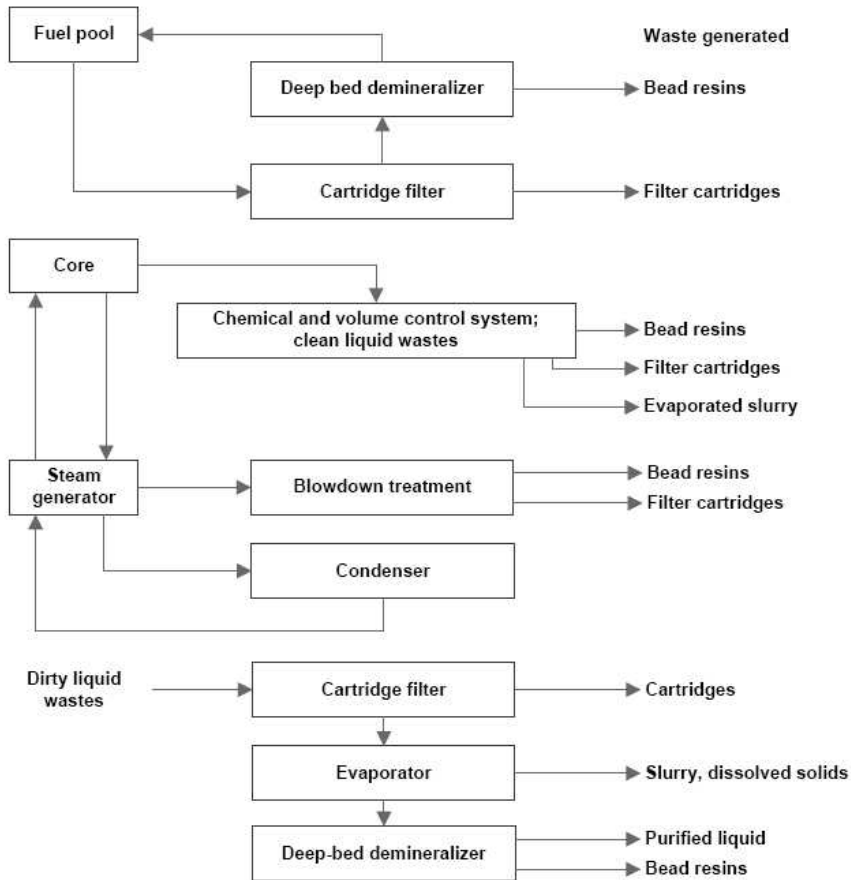


그림 1. 가압경수로(PWR)에서의 방사성폐기물 발생원

- 농축폐액

증발기로부터 발생하는 방사성폐기물들 중 약 40%는 농축폐액으로서, 이들의 발생량을 최소화하는 것이 폐기물 감용의 주요 대상이 되고 있다. 그래서 실제 발전소에서는 이들 농축폐액을 고화하기 위해, 시멘트 고화를 이용했으나 다량 함유된 붕소로 인하여 고화처리에 대한 어려움이 발생하게 된다. 이때 고화처리에 대한 효율을 높이고자 적절한 첨가제를 사용하는 것이 일반적이다. 하지만 농축폐액에 함유된 방사성 물질은 발전소마다 차이가 있다. 그리고 다양한 종류의 음이온들로 인하여, 방사성폐기물 고화체의 구조적 건전성(고화 능력)이 저하하는 문제가 발생하게 된다.

한편 원자력발전소에서 1995년부터 농축폐액 건조설비도입을 통해 파라핀 고화 방법을 채택하여 사용되었다. 하지만 파라핀 고화체의 층 분리 현상으로 고화 요건의 불만족 사항이 있으며, 이로 인해 처분 적합성을 만족시키지 못하고 현재는 건조 분말 형태로 각 발생 발전소에 보관 중이다. 한편 다른 방식의 고화 방법을 채택한 발전소는 신고리 1, 2 발전소와 월성 3 발전소는 폴리머 고화방식을, 한빛 3 발전소와 한울 3 발전소는 원심분리방식을 채택하였으나 장비의 결함으로 전처리 방법(LRDPs)을 채택하여 사용하고 있으며, 발전소별 농축폐액 처리방법은 아래 표 1에 나타내었다.

표 1. 원자력발전소별 농축폐액의 처리방법

구 분	처리방식	물질형태	향후계획	
고리본부	고리 1발전소	CWDS	분말보관	PC HIC용기포장
	고리 2발전소	CWDS	분말보관	PC HIC용기포장
	신고리 1발전소	폴리머	분말보관	PC HIC용기포장
	신고리 2발전소	폴리머	분말보관	PC HIC용기포장
한빛본부	한빛 1발전소	CWDS	분말보관	PC HIC용기포장
	한빛 2발전소	CWDS	분말보관	PC HIC용기포장
	한빛 3발전소	원심분리기	분말보관	PC HIC용기포장
한울본부	한울 1발전소	CWDS	분말보관	PC HIC용기포장
	한울 2발전소	CWDS	분말보관	PC HIC용기포장
	한울 3발전소	LRDPS	-	-
월성본부	월성 1발전소	-	-	-
	월성 2발전소	-	-	-
	월성 3발전소	폴리머	분말보관	PC HIC용기포장

- 슬러지 / 슬러리 폐기물

처분부적합 방사성폐기물의 발생원 중 하나로 슬러지(Sludge)/슬러리(Slurry) 폐기물을 예로 들 수 있다. 이는 일종의 습윤 상태에 있는 고체 입자로서 원전운

영 및 해체과정에서 발생하는 제 2 차, 그리고 제 3 차 부산 폐기물(secondary waste)로 발생 된다. 한편 슬러지의 경우 균질폐기물에 해당하며, 국제원자력기구(International Atomic Energy Agency, IAEA)에서는 “수용액 상태에서 수분을 제거한 후 흡착되지 않아 여과로 제거되지 않은 침전물 그리고 기타 잔류 고형성분으로 정의” 하고 있다[12].

특히 원전 운영과정에서 액체폐기물 처리 계통(Liquid Radwaste System, LRS)이나, 원자로 냉각재 계통(Reactor Coolant System, RCS) 및 그의 구성물들에 대한 제염 시 발생하게 된다. 즉 통상적인 원전 운영폐기물처리 및 유지보수 과정에서 발생한다고 볼 수 있다. 원전 해체과정에서는 원전 운영과정에서 발생하는 것 이외에 오염된 콘크리트 구조물의 표면제염(연마 등), 원전 구성물의 절단 그리고 토양의 오염 등으로 파악하고 있다. 그리고 슬러지의 화학적 특성 및 방사학적 특성은 발생 장소와 사용된 화학제의 종류에 따라 크게 달라질 것으로 판단된다.

(2) 원전 해체 방사성폐기물

앞서 언급했듯이 처분부적합 방사성폐기물은 원자력발전소의 해체 시에도 발생한다. 이는 원자력시설의 해체(Decommissioning)로부터 발생하는 방사성폐기물을 말하며, 한국환경산업기술원(KRITI)의 「원전 해체폐기물 관리 동향」 보고서(2016)에서는 “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” 라고 언급되었다[13]. 이러한 폐기물들은 원전해체 시 단기간에 많은 양으로 발생하며, 대표적으로 오염 토양, 콘크리트, 그리고 제염 폐액 등을 예로 들 수 있다.

스웨덴 원자력 검사기구 (Swedish Nuclear Power Inspectorate, SKI)는 「원전 해체 시 발생하는 폐기물」 보고서(1992)에서 800 ~ 1,000 MWe 의 용량을 가진 경수로의 운영 및 해체폐기물에 대하여 언급하였다. 해당 내용은 “원전운영 및 원전해체 과정에서 발생하는 폐기물의 종류, 부피, 방사성핵종, 방사능 준위들에 대하여 비교되어있다. 결론적으로 원전운영 폐기물과 해체폐기물 간에는 유사성이 매우 높다.” 라는 내용이다. 또한 “원전 운영폐기물에 적용되는 기준이나 권고사항을 그대로 해체폐기물에 적용하는 것은 매우 자연스럽다.” 라고 기술되어 있다[14].

한국원자력환경공단(KORAD)에서는 「원전 해체폐기물 인수기준(안) 설정 연구」 최종 보고서(2018)에서는 원전운영 시 발생하는 방사성폐기물의 특성평가 방법에 대하여 다음과 같이 언급되어있다. “방사성오염 물질의 종류와 방사능량, 오염정도 등을 포함하는 방사선학적 특성자료(Radiological Characterization Data) 조사가 선행되어야 한다.” 그리고 이러한 방사선학적 특성자료 조사방법은 일반적으로 미국 정부가 발행한 “MARSSIM 보고서에서 제시한 부지이력평가(Historical Site Assessment), 부지개략조사(Scoping Survey), 부지특성조사(Site Characterization Survey), 오염정화 조사 및 최종상태조사 등의 다양한 방법 등에 의해 얻을 수가 있다” 라고 기술되어 있다[15]. 따라서 본 연구의 주요 대상인 오염 토양, 콘크리트, 그리고 제염폐액 등에 대하여, 그의 특성을 다음과 같이 발췌하여 나타내었다(임상현(2018) 재인용[16]).

- 오염토양

원전 운영 시 예기치 못한 사건 또는 사고가 발생되지 않았던 국내 고리 1호기의 경우, 방사성폐기물 분류기준에 의거 방사능 해제 준위를 초과하는 방사성 오염은 없었으며, 오염된 토양은 전혀 없는 것으로 가정하였다. 하지만 미국에서 해체가 완료된 원자력발전소를 대상으로 조사한 내용을 토대로, 오염된 토양 폐기물의 발생량을 평가 및 예상하였다. 해당 결과들을 근거로 개발된 상관식을 통해 표 2에 나타내었다. 표 2에서 보듯이 토양오염에 대하여, 영향을 미치는 인자와 참조 값 그리고 이에 대한 가중치를 가정하였으며, 고리 1호기의 해체전략에 따른 토양오염폐기물의 발생량을 예측하였다.

표 2. 고리1호기의 해체전략에 따른 토양오염 폐기물 발생량 예상[Unit : ft³]

구분	DCGL ²⁾ 기준	토양오염 폐기물 발생량(ft ³)	
		즉시해체	자연해체
고리1호기 ¹⁾	0.10 mSv/yr	322,113	317,981
	0.25 mSv/yr	267,579	263,448
	0.30 mSv/yr	249,401	245,270

1) 영향받은 부지는 고리 1발전소 부지 면적(38,315 m²)을 가정함.
 2) 잔류방사능 유도농도

- 생체 차폐용 콘크리트 벽

생체 차폐용 콘크리트는 원자료를 둘러싸고 있는 벽으로서, 고리 1호기의 경우 총 부피가 957,474 kg (2,202 m³) 으로 측정되어 있다. 이어서 표 3 에는 정지 후 10 년 기준으로 평가한 핵종 재고량을 나타내었다.

표 3. Bio-shield 콘크리트의 주요 방사성 핵종별 방사능 [Unit : Bq]

방사성 핵종	방사능(Bq)	비율 (%)
H-3	1.02E+16	89.3
Eu-152	4.82E+14	4.2
Co-60	3.35E+14	2.9
Ar-39	1.89E+14	1.6
Fe-55	8.00E+13	0.7
Eu-154	7.40E+13	0.6
Ba-133	1.33E+13	0.1
Cs-134	8.21E+12	0.07
C-14	7.34E+12	0.07
Ni-63	6.86E+12	0.06
Rest	5.25E+13	0.4
Total	1.14E+16	100

- 제염 폐액 및 액체폐기물

원자력발전소의 해체 시 시설 내 작업자의 접근성 및 ALARA 관점에서 방사선량을 최소화하기 위해 일차계통 제염을 수행한다. 그리고 최종 발생하는 해체 방사성폐기물의 감용을 위해, 모든 설비에 대한 전반적인 제염작업을 수행한다. 이때 다양한 형태 및 종류의 제염 폐액이 발생 되며, 이들은 이온교환수지 및 필터를 통해 우선 적으로 처리하게 된다. 이후 액체 내 잔류하는 방사물은 증발기를 통해 처리할 수 있다. 처리되어어도 액체 내에 남아 있는 방사물을 증발기를 이용하여 처리가 가능하다. 이와 같은 일련의 과정을 거쳐 최종적으로 발생하는 방사성폐기물로서 폐수지, 폐필터, 온갖 유기 화합물, 또는 무기화합물을 내포한 슬러지가 발생하게 된다[17, 18].

다. 처분부적합 방사성폐기물의 발생량

한편 미국에서는 2006년 Ranch Seco 발전소의 해체에서 처분장으로 이송한 방사성폐기물은 주로 콘크리트 부스러기들로 구성된 미처분 폐기물들이며, 이들 폐기물은 11,400 m³ 정도일 것으로 추산했다[19]. 그리고 San Onofre 원전의 해체에서 발생된 폐기물은 1999년부터 발생되어서 2005년에 급작스럽게 발생량이 증가하였다. 아래 표 4에서 보듯이 2004년과 비교하여 2005년에는 약 3배 이상 증가하였으며, 이후에도 계속적으로 증가하는 경향을 보였다. 이는 2005년도 전에는 구조물에 사용된 철제류 그리고 파이프류이었지만, 2005년도 이후에는 건물 해체 시 발생하는 콘크리트, 콘크리트 보강용 철강, 그리고 오염된 토양 폐기물 때문인 것이라고 언급했다[20].

표 4. SONGS 1 Radioactive Low Level Waste Disposal Volumes [Unit : ft³]

Year	Class A	Class B	Class C
1999	0	265	0
2000	20,453	30	0
2001	88,993	0	0
2002	42,022	0	332
2003	22,566	0	0
2004	36,423	102	8
2005	127,287	208	105
2006	338,800	0	0
2007	578,906	0	0
2008 ¹⁾	425,108	0	0
TOTALS	1,657,492	605	445

1) Volumes as of August 26, 2008, not including waste volumes sent to waste processors and shipped to burial sites.

2) 1 Cubic Feet = 0.028 Cubic Meters

「중·저준위 방사성폐기물 관리 시행계획」 보고서(2018)에서는 “중·저준위 방사성폐기물이 2017년 말, 200L 드럼 기준으로 총 138,427 드럼이 발생하였고 원전에서 발생한 102,852 드럼은 각 원전 임시저장시설에서 관리” 하고 있으며, 이중 “처분시설에 반입된 14,272 드럼은 원자력환경공단에서 관리하고 있다” 라고 언급하였다 [21]. 원전 소내에서 임시저장 중인 방사성폐기물들은 대부분 균질폐기물로서, 농축폐액, 폐필터, 폐수지, 슬러지/슬러리 등으로 구성되어 있다. 현재 국내 원전에 저장되어있는 처분부적합 방사성폐기물의 현황을 표 5에 나타내었다.

표 5. 폐기물 저장 현황 (2019, 3분기 기준) - [Unit : 200L 드럼]

구분	고리	월성	한빛	한울	합계
농축폐액	11,742	-	4,624	3,649	20,015
폐필터	790	341	100	521	1,752
폐수지	4,263	3,216	2,657	3,103	13,239
슬러지	91	98	138	347	674
총 저장량	42,272	10,627	20,358	15,398	88,655

2. 방사성폐기물 처분규정 및 인수조건

가. 해외 처분규정 및 인수조건

방사성폐기물의 효율적인 관리를 위해, 처분장과 같은 특정 장소에 모아서 중앙 집중 관리하게 된다. 약 300년 동안의 제도적 관리 중 처분장 성능목표(performance objectives)를 유지 및 달성할 수 있도록 관리된다. 이처럼 처분장의 성능목표를 위해 처분장 내에 처분되는 방사성폐기물은 드럼 당 함유되는 방사능량을 제한하게 된다. 이로써 처분장의 방사성폐기물 수용능력(처분 드럼 수)이 결정되게 된다. 이때 처분장의 환경조건(dry site, wet site)과 사회 문화적인 요건들을 포함한다. 그리고 방사성폐기물 관리에 대한 국가 정책 등을 고려해야 하며, 해당 처분장에서는 이들을 관리하기 위한 방사성폐기물 인수기준을 설정하게 된다[22]. 이어서 처분장에서 기본적으로 요구하는 사항으로서, 방사성 고화체의 방사학적 특성 및 물리화학적 특성 등을 고려해야 한다. 한편 IAEA에서는 방사성폐기물 분류체계를 그림 2와 같이 제시했으며[23], 이에 따라 국내에서는 방사능 준위별로 적합한 처분방식을 제안한 그림 2과 같이 제시하였다.

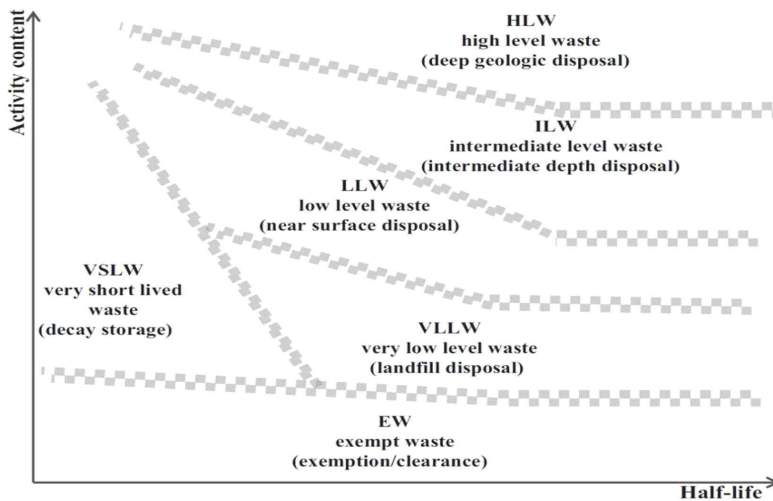


그림 2. IAEA 방사성폐기물 분류체계의 개략도

그림 3에서 보듯이 방사성폐기물은 방사능 준위와 핵종에 따라 처분방식도 별도로 규정되어 있다. 이때 “중준위는 심층 혹은 동굴 처분, 저준위는 심층 및 동굴과 표층 처분, 극 저준위는 중준위와 저준위 폐기물 처분에 사용되는 모든 처분방식을 적용 가능하다” 라고 규정되어 있다. 이러한 방사성폐기물은 국가별로 제시하고 있는 고시 및 법령에 따라 처분되어야 한다. 한편 국내의 경우 방사성폐기물은 각각의 준위별 폐기물 인수기준(Waste Acceptance Criteria, WAC)에 따라 처리 및 운반되어 폐기물 인수시설로 보내진다. 그리고 해당 시설의 처분 인수기준에 따라 충족 여부를 확인하고, 이를 통과한 폐기물들은 처분시설에 보관하여 관리되어 진다.

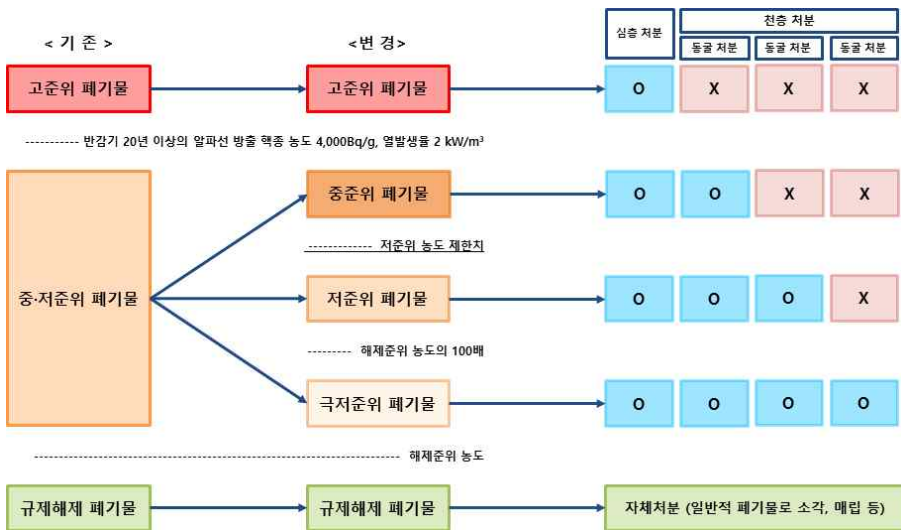


그림 3. 국내의 방사성폐기물 분류체계의 변화 및 처분방법

방사성폐기물을 처분하기 위해 처분장이 건설되는 부지의 특성과 폐기물을 처분하여 관리하기 위한 시설의 특성, 그리고 처분장에서 관리되는 폐기물의 특성들이 규명되고 서로 보완되어야 처분시설의 성능을 향상 시킬 수 있다. 특히 폐기물 특성은 물리적, 화학적, 방사선적 특성이 있으며, 처분시설의 설계와 처분 관련 기준 등의 결정을 위한 필수자료로 사용되고 있다. IAEA에서는 폐기물의 특성을 표 6과와 같이 6 가지 특성(방사능, 화학적, 물리적, 기계적, 열적 생물학적 특성)으로 세분화하여 제시하고 있다[23].

표 6. IAEA 폐기물 특성분류 및 주요 사항

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

또한, 현재 미국의 규정은 10 CFR 61(Land Disposal of Radioactive Waste)과 DOE 0 435.1 (구 5820.2A, Radioactive Waste Management)으로 양분되어 있다. 해당 규정은 방사성폐기물 발생원에 따라 적용되며, 처분장의 인수기준에 따라 해당 규정에 따라 각각 설정되어 있다.

먼저 10 CFR 의 경우, 10 CFR 20.2006 에는 방사성폐기물의 운반과 관련, 10 CFR 61. 56 에는 처분하고자 하는 모든 등급(10 CFR 61. 55 항에 규정됨)의 방사성폐기물 등에 대하여 최소한의 충족 요건들을 기술되어 있다. 그리고 처분장에서의 폐기물 취급을 수월하도록, 작업자의 보건 및 안전에 대한 요건들도 규정하고 있다 [24]. 이어서 DOE 0 435.1 의 경우, 고준위 폐기물 또는 국가적 차원의 폐기물들은 미국의 NRC 가 아닌 DOE 에서 별도로 운영 및 규정하고 있다. 따라서 DOE 0 435.1 에서는 폐기물 관리 요구사항 중 이를 처분하기 위한 폐기물의 특성, 조건 그리고 인수기준에 대해 기술되어 있다[25].

나. 국내 처분 규정 및 인수조건

국내에서 중·저준위 방사성폐기물의 처분과 관련하여 국가 규정으로는 원자력안전위원회 고시 제 2021-26 호 「중·저준위 방사성폐기물 인도규정」, 산업통상자원부 고시 제 2016-230 호 「방사성폐기물 인수방법 등에 관한 규정」이 있으며[26], 또한 원자력환경공단의 「방사성폐기물 인수검사」와 「고형화 방사성폐기물 구조적 건전성 시험 검증」이 있다. 한편 산업통상자원부 고시 제 2016-230 호 「방사성폐기물 인수방법 등에 관한 규정」에서는 처분장에 인도되는 방사성폐기물의 특성평가와 관련해서[27], 원안위 고시 제 2021-26 호 「중·저준위 방사성폐기물 인도규정」과 원자력환경공단(방폐물 관리사업자)의 기준을 만족하여야 한다고 기술하였다. 이어서 표 7에 국내 폐기물 인수기준의 항목별 분류 조건을 요약하여 나타내었으며, 방사성폐기물의 처분 인도 기준과 관리사업자의 기준에서 항목별 내용을 정리하여 나타내었다.

표 7. 국내 폐기물 인수기준(Waste Acceptance Criteria, WAC)의 항목별 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 시험 방법 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) 중저준위 방사성폐기물 인도 규정 [28]

● 폐기물 포장물의 방사선적 특성

원자력안전위원회 고시 제 2021-26 호 「중·저준위 방사성폐기물 인도규정」에서는 방사선 특성과 폐기물 포장물의 구조적 건전성에 관한 조건을 기술하고 있다. 아래는 폐기물 포장물의 방사선적 특성으로 방사능 농도 등의 제한, 임계안전, 핵종 규명, 표면오염에 관련된 규정이 포함되어 있다.

- 방사능 농도 등의 제한 : 먼저 방사능 농도 등의 제한은 “위탁자가 처분시설운영자에게 인도하는 폐기물의 방사능 농도는 포장물 단위로, 원자력안전위원회가 정하는 중·저준위 방사성폐기물에 해당해야 한다.” 라고 언급하고 있다. 그리고 “원자력안전위원회 고시 「중·저준위 방사성폐기물 처분시설의 운영, 폐쇄 및 폐쇄 후 관리에 관한 기술기준」에 따른 방사성폐기물 인수기준의 방사성 핵종별 농도를 만족해야 한다.” 라고 기술되어 있다. 아래 표 8에 방사성폐기물 인수기준의 방사성 핵종별 농도를 나타내었다.

표 8. 저준위방사성폐기물의 방사능 농도 제한치 [Unit : Bq/g]

핵 종	처분 농도제한치 (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

- 임계 안전과 표면오염 : 임계 안전의 내용으로는 “먼저 방사성폐기물 내에 포함되어 있는 핵분열성 물질의 농도는 임계안전이 유지될 수 있도록 충분히 낮아야 한다.” 라고 명시되어 있다. 그리고 표면오염의 내용으로는 “포장물의 외부 표면은 가능한 한 더러운 물질, 수분, 기타 제거성 표면오염이 없어야 하며, 표면의 방사능오염은 원안위 고시 「방사성물질 등의 포장 및 운반에 관한 규정」에 부합하여야 한다.” 라고 명시하고 있다.

- 핵종 규명 : 핵종 규명의 내용으로는 “폐기물에 포함되어있는 전체 방사능량의 95 % 이상을 구성하는 방사성 핵종을 규명하여야 하며, 다음 방사성 핵종에 대하여는 그 농도가 규명되어야 한다.” 라고 명시되어 있다. 따라서 방사성폐기물의 방사성 핵종의 규명 방법에 대하여 기술되어 있다.

● **폐기물 포장물의 구조적 건전성**

아래는 포장물의 구조적 건전성에 관한 조건으로 폐기물의 형태, 고형화 조건, 포장물의 조건, 유리수, 부식, 유해성 물질, 폭발성물질 등 관련된 규정이 포함되어 있다.

- 폐기물의 형태 : 먼저 폐기물의 형태의 내용으로는 “폐기물은 취급 시와 처분 후 안전성을 확보할 수 있도록 고체 형태이어야 하며, 폐기물은 물리적·화학적으로 안정하여야 하며 유동성이 없어야 한다” 라고 명시하고 있다.

- 고형화의 조건 : 고형화 조건의 내용으로는 고형화 폐기물은 다음 조건을 만족하여야 한다. “유동성이 있는 폐기물을 고형화하는 경우에는 고형화 폐기물은 균질하게 고형화 되어야 한다.” 라고 명시되어 있다. 그리고 “고형화 폐기물은 함유하고 있는 방사성핵종의 침출이 처분 환경에서 제한될 수 있도록 적절한 방법으로 고형화 처리 및 포장되어야 한다.”, 이어서 “고형화 폐기물은 취급시 예상되는 상황과 처분 시 예상되는 압력 및 온도 변화에서 그 구조적 건전성을 유지할 수 있도록 충분한 기계적 강도를 가져야 하며, 물과 접촉하는 환경에서 그 형태를 유지할 수 있어야 한다.” 라고 명시하고 있다.

- 포장물의 조건 : 포장물 조건의 내용으로는 “모든 폐기물은 비가연성 용기로 포장 되어야 하며, 포장용기는 육안 검사 시 이상이 없어야 한다.” 그리고 “포장물은 처분 시 예상되는 상황에서 구조적 건전성을 유지할 수 있어야 하며, 포장물 내에 기체 발생으로 내부 압력이 증가하는 경우에도 견딜 수 있어야 한다.” 라고 명시되어 있다.

- 유리수 : 포장물 내의 유리수는 최대한 제한되어야 하며, 폐기물 부피의 0.5 %를 초과해서는 안 된다. 다만, 고건전성용기(HIC)를 사용하는 경우에는 폐기물 부피의 1% 이상 초과해서는 안 된다.
- 부식 : 부식성 물질을 포함하는 폐기물은 부식성이 완화되어야 하며, 부식에 견딜 수 있도록 포장되어야 한다.
- 폭발성물질 등의 내용으로는 “폭발성·인화성·발화성 물질 등을 포함한 폐기물은 적절하게 처리하여 이로 인한 위험성이 제거되어야 한다.” 라고 명시되어 있다. 그리고 “폐기물은 방사분해, 생물학적 및 화학적 반응에 의한 가스, 증기 및 액체를 발생시켜 포장물의 건전성이나 처분시설의 성능을 저하시켜서는 안되며, 폐기물을 취급할 때 작업자의 안전을 저해하여서는 안 된다” 라고 명시되어 있다.
- 유해성 물질의 내용으로는 “유독성이나 부패성 및 전염성 물질이 포함된 폐기물은 이러한 위험성이 제거되어야 한다.” 라고 하며, “킬레이트제 등을 포함하는 폐기물은 처리과정 중에 그 특성이 제거되거나 0.1 % 이상 함유된 폐기물은 명시되어야 하며 처분시설 요건에 부합되도록 제한되어야 한다.” 라고 명시되어 있다.

(2) 원자력환경공단의 인도 기준[29]

● 방사성 폐기물 고화체 일반 요건

「중·저준위 방사성폐기물 처분시설 안전성 분석 보고서」에서는 방사성폐기물 포장물의 일반 요건으로 “다음과 같은 내용물을 포함한 폐기물 포장물은 처분폐기물 특성 기준을 충족시키거나 그 내용물이 제거되지 않으면 직접 처분할 수 없다.” 라고 명시하고 있다. 해당 내용물로는 “액체 및 기체 폐기물, 고형화 물질과 화학적으로 반응하는 물질, 포장물 및 포장물 사이에 사용되는 물질, 공학적 방벽 구조물을 부식시키는 물질, 상의 유기물(흡수제 내의 솔벤트, 희석제 등)” 이 있으며, 이어서 “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 등이 있다.” 라고 언급하였다.

또한, “폐기물 포장물은 쉽게 식별될 수 있도록 외부에 폐기물 포장물의 총 방사능량, 고유번호, 폐기물 발생 일자 및 발생 장소, 표면 선량률 등의 주요 정보를 읽기 쉽고 내구성이 있도록 표시” 하여야 한다고 언급했다. 그리고 “폐기물 포장은 취급, 운반 및 처분 설비에 적합하게 표준화되어야 하며, 크레인과 지게차 사용이 용이하도록 제작되어야 하고, 폐기물을 담는 용기는 사전에 처분자의 승인을 받아야 한다” 라고 명시하고 있다. 그리고 세부기준은 “폐기물 포장물의 단위 중량은 콘크리트 포장물의 경우 6 톤 이하, 강제 드럼 포장물은 1 톤 이하여야 한다.”, 이어서 “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.” 라고 제시되어 있다.

● 폐기물 포장물의 고형화 요건

방사성폐기물 포장물의 고형화 요건은 크게 두 가지로, 균질 및 비균질 폐기물로 나눌 수 있다. 한편, 처분부적합 방사성폐기물 중 농축폐액, 폐수지, 슬러지/슬러리 등의 경우는 균질폐기물로 분류된다. 이와 같은 균질폐기물들은 고형화/안정화가 의무적으로 되어야 한다고 명시되어 있다. 따라서 고형화된 방사성폐기물 고화체는 표 9에서 보듯이 해당 요건을 충족해야 하며, 고건전성용기(HIC)를 사용하는 경우에는 고화체의 시험요건을 적용하지 않는다.

이 외에도 분산 특징을 갖는 방사성폐기물을 고형화하는 경우 이들을 균질하게 고형화하여야 한다고 제시했다. 이는 방사성폐기물은 종합적으로 안전하게 관리할 수 있도록 국가 차원에서 특수 설계된 부지 및 시설에 집중시켜 관리하게 된다. 이를 ‘방사성폐기물을 처분장에 처분한다’ 라고 말한다. 이러한 방사성폐기물은 처분장 인수기준과 국가의 폐기물 인도 규정을 충족시켜 안전성을 확보할 수 있어야 하며, 해당 내용은 표 9에 나타내었다[29,30]. 또한, 표 8에 나타난 ‘중·저준위 방사성폐기물 처분시설 안전성분석보고서(KORAD)’ 에 기술되어 있는 고형화 시편에 대한 판정 기준을 만족해야 처분이 가능하다[31].

표 9. 폐기물 고화체 시편에 대한 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.

표 10. 처분 안전성 확인을 위한 폐기물 고화체의 시험 항목별 판정기준

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 ¹⁾ 후 압축강도 시험		
3	열순환시험후 압축강도 시험		
4	방사선조사시험 후 압축강도 시험		
5	침출시험	시편의 침출지수는 Cs, Sr, Co 핵종에 대하여 6 이상	
6	유리수 측정	고건전성용기의 1 %, 그 외는 0.5%를 초과하면 안됨.	

제 2절 . 방사성폐기물의 고형화(Solidification) 기술

1. 방사성폐기물의 고형화 기술 현황

한국원자력연구원(KAERI)의 「방사성 농축폐액 처리·처분을 위한 신 고화 매질 개발」 보고서(2010)에서는 방사성폐기물의 안정화(Stabilization)에 대해서 “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” 라고 언급하였다. 이어서 고형화(Solidification)에 대해서는 “고체를 포함한 충분한 양의 고화제를 유독물질에 첨가하여 결과적으로 고형 물질을 형성시키는 공정” 이라고 언급하였다. 그러나 안정화와 고형화는 처리 공정상 동시에 이루어지며, 이로 인하여 보통의 경우에는 ‘고형화’ 라는 표현을 사용한다. 그리고 방사성폐기물의 안정화 및 고형화는 유해폐기물에 의한 환경오염의 방지와 유해폐기물의 취급개선을 목적으로 하고 있다. 이때 환경오염의 방지를 목적으로 고형화 처리하는 경우는 용출이 어려운 형태로 변환시키는 경우이다. 즉, 유해폐기물 중에 함유된 중금속 등이 환경 중의 매체(물)를 통해서 지하수나 토양 등을 오염시키지 않도록 무해화시키는 것을 말한다. 그리고 유해폐기물의 취급개선을 목적으로 고형화 처리하는 경우는 유해폐기물의 운반과 처분과정에서 비산 및 침출수의 누출을 방지하는 것이다.

고형화 공정은 고화 시 사용되는 고화 매질의 특성에 따라 크게 무기성 및 유기성 공정으로 구분된다. 유기성 고화 매질은 대부분 소수성(Hydrophobic)의 특성을 띠기 때문에 유기 독성물질에 적합하다. 하지만 사용 시 전력과 장비에 대한 유지보수 비용이 많이 들며, 이러한 이유로 방사성폐기물과 같이 유해성이 매우 높은 경우에만 한정적으로 사용되고 있다. 그리고 무기성 고화 매질은 보통 시멘트 반응성을 가지고 있으며, 적절한 함수율을 가지고 있는 무기성 슬러지와 같은 중금속류가 함유된 방사성폐기물을 고형화하는 경우에 매우 적합하다. 상기와 같이 폐기물을 안정화된 형태로 전환하기 위해 사용되는 고형화 공정은 일반적으로 시멘트 고화, 아스팔트 고화, 파라핀 고화, 유리화, 폴리머 등(그림 4 참조)으로 구분하고 있다[32].

방사성 폐기물 고화 기술				
시멘트	아스팔트	파라핀	폴리머	유리화
				

그림 4. 방사성폐기물 고화 기술의 종류

가. 시멘트 고화 (Cementation)

시멘트 고화 방법은 중·저준위 방사성폐기물의 고화 방법으로 중 가장 많이 사용되고 있다. 주로 고체 입자를 많이 함유한 슬러지/슬러리, 농축폐액, 소각재, 이온교환수지 처리 등에 적합하다. 이때 사용되는 시멘트는 ASTM Type I, II의 규정을 따르며, 시멘트에 대한 폐기물의 중량비는 20 ~ 30 % 정도이다. 그리고 시멘트 고화 시 방사성 핵종이 Sr, Pu, Am인 경우, 핵종이 시멘트 내에 결합이 잘 되지만, Cs, Ru인 경우는 핵종의 침출율이 상당히 높다. 따라서 이에 대한 대책 마련이 필요하며, 한편 시멘트 혼합물에 지름이 0.002 mm 이하인 미세한 흙입자(점토, Clay)를 가하면 Cs, Sr의 침출율을 감소시킬 수 있고 알려져 있다. 이어서 포틀랜드 Type I과 Type II 시멘트는 적절한 응고를 위해 폐기물의 pH가 비교적 높아야 한다. 예를 들어 pH가 8 이상으로 전 처리된 폐기물에 대하여, 시멘트가 폐기물의 화학성분에 잘 적응할 수 있다. 하지만 borate 성분이 폐기물에 존재하면 시멘트의 응고가 지연됨을 보인다. 상기와 같은 문제점은 시멘트/폐기물의 비율을 증가시키고, 시멘트와 폐기물을 혼합한 후 이 혼합물에 액체의 sodium silicate와 같은 첨가제를 넣거나, 또는 혼합하기 전에 시멘트와 Sodium metasilicate를 혼합해 해결할 수 있다.

나. 아스팔트 고화 (Bituminization)

아스팔트 고화 공정은 열가소성 미소 캡슐화(Thermoplastic Macroencapsulation) 공정의 한 가지로서, 폐기 고화 시 고화 매질로 아스팔트를 사용하는 공정이다. 이는

주로 유럽에서 개발되어 사용되었으며, 해당 기술의 타당성은 광범위한 운영 경험을 통해 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 표면선량률은 시멘트 고화체와 비교했을 때 보다 높으나, 시멘트 고화체에 비해 감용비가 훨씬 높은 반면에 침출율은 매우 낮다. 한편 아스팔트 고화체는 융점이 60 °C로 낮고, 기계적 강도가 낮으며, 물과 접촉 시 팽윤 현상을 일어나는 단점이 있다. 현재 사용되고 있는 아스팔트 고화 공정 중 대표적인 것은 회분식 공정, Extruder 공정 및 박막 증발 공정(Thin film process)이 있다.

다. 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 Monomer 의 중합반응이 일어난다.

라. 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 3 단계로 나누어 생각할 수 있다. 재처리 과정에서 얻어지는 폐액 중 대부분의 원소는 질산화물로 용해되어 있기 때문에 2 단계 공정을 탈질산 공정이라 한다. 제 1 단계와 2 단계에서 얻어지는 고화체는 가소물(calcine)이라고 하는데 이 가소반응은 500 ~ 800 °C에서 종료된다. 제 3 단계에서는 제 2 단계에서 얻어진 분말상의 가소물 첨가제와 혼합하여 900 ~ 1,000 °C에서 유리(주로 Borosilicate glass)와 함께 용융시켜 고화체를 제조하는 공정으로 유리화를 위한 첨가제는 폐기물의 조성공정에 따라 선택되며 실리콘(Silicon), 티타늄(Titanium) 등이 사용된다.

2. 기존 고형화 기술의 문제점 및 개선방안

가. 처분부적합 폐기물의 관리에 대한 어려움

원자력발전소의 운영 및 해체 시, 그리고 동위원소의 사용 목적 및 방법에 따라서 발생하는 방사성폐기물은 종류와 형태가 매우 다양하다. 원전운영 시 발생하는 방사성폐기물은 핵연료의 붕괴로 인한 핵분열 물질과 중성자에 의해 방사화된 부식 생성물들이 발생한다. 이때 이들 물질을 제거 및 제염하는 과정에서 방사성폐기물은 기체, 액체, 고체 형태로 발생한다. 기체 폐기물의 경우 주로 반감기기가 매우 짧으며, 이들이 완전히 감쇄할 수 있도록 저장 처리한다. 그리고 고체 폐기물의 경우 표면 연마를 통해 오염 부분을 제거하는 방법이 있으며, 압축 처리를 통해 부피를 감용화하는 방법도 있다. 그리고 액체폐기물의 경우 폐기물 내의 핵분열성 물질과 부식 생성물을 제거(처리)하는 과정에서 매우 다양한 종류 및 형태의 폐기물들이 발생하며, 일반적으로 이들은 고화처리 한다. 한편, 원자력발전소 해체 시 발생하는 방사성폐기물은 원전운영 시 발생하는 방사성폐기물과 매우 유사하다. 그러나 실제로는 원전해체 시 발생하는 방사성폐기물이 원전운영 시 발생하는 폐기물보다 더 다양하게 발생한다. 특히 여기서 주목되는 것은 오염 토양과 콘크리트 폐기물이 단기간에 대량으로 발생한다는 점이다. 한편 밀봉 및 개봉 선원을 사용한 산업체에서는 발생하는 방사성폐기물의 양이 적으나 매우 다양한 방사성폐기물을 발생시킨다. 상기 언급된 방사성폐기물은 발생한 상태 자체로는 관리하기 어려우며, 작업자의 방사선 피복 위험도도 매우 높다. 따라서 이들 방사성폐기물은 자체처분할 수 없으며, 포장 및 처리 과정을 통해 처분하기 적합한 형태로 전환해야 한다.

나. 미흡한 폐기물 처리 기술 및 고화시 부피 증가에 대한 문제점

원자력발전소의 운영 및 해체 시 발생하는 방사성폐기물의 고화처리하는 방법으로는 표 11에서 언급한 고화기술이 일반적으로 사용된다. 표 11에서 보듯이 어떠한 고화 매질을 사용하더라도 방사성폐기물을 단순히 고화할 경우 최종 발생하는 방사성폐기물 고화체는 증가하기 때문에, 감용화 측면을 고려해야 될 필요성이 크

다. 한편 원자력발전소 해체 시 발생하는 폐기물 중에서 오염된 토양, 콘크리트 폐기물의 경우 상대적으로 단기간에 대량으로 발생한다. 이러한 이유로 해당 폐기물의 처분량을 줄일 목적으로 자체처분이 가능한 준위로 낮출 수 있는 핵종 제거 연구가 주를 이루고 있다. 하지만 자체처분이 불가능한 방사성폐기물의 경우, 이에 대한 처리/처분 기술이 전무한 실정이다.

표 11. 방사성폐기물 고화기술 및 기술 특성

기술명	기술 특성
파라핀 고화	고화체와 폐기물이 균일하게 섞이지 못하며, 기계적 강도 측면에서 취약함
시멘트 고화	현재 가장 많이 적용되는 고화방법으로, 처리 공정 및 장치가 간단하지만 용출율이 높다는 단점이 있음
아스팔트 고화	시멘트 고화에 비해 용출율이 낮고 감용비가 큰 장점이 있으나, 기계적 강도가 낮고 물과 접촉 시 팽윤현상이 발생함
유리화	고준위 폐액을 고화하기 위한 공정으로 분말상의 가스물을 첨가제와 혼합하여, 900 ~ 1000 °C에서 유리와 함께 용융시켜 고화
폴리머 고화	타 고화처리에 비해 부피 증가가 낮으며, 폴리머 조합비율에 따라 고화체의 구조적 건전성을 높일 수 있음

다. 기존 고화 공정에 대한 문제점

국내 원자력발전소의 경우 농축폐액과 폐수지 등 원전운영 시 발생하는 방사성폐기물에 대하여 시멘트 고화 공정(Atcor Process, Hittmann Process)을 도입해 운영하고 있었다. 하지만 초기 방사성폐기물의 부피보다 최종 발생하는 방사성폐기물 고화체의 부피 증가 문제점을 가지고 있으며, 이를 해결하고자 파라핀 고화 공정으로 대체하게 되었다. 파라핀 고화 공정은 농축폐액을 CWDS(Concentrate Waste Drying system)을 통해 건조 분말로 전환하며, 이후 파라핀 고화하는 기술이다. 해당 기술은 농축폐액을 건조 분말화하는 것에 있어서, 방사성폐기물의 감용 측면에서 매우 획기적이었다. 하지만 파라핀 고화체는 구조적 건전성과 핵종 누출억제 기능이 매우 낮아 처분장 인수기준을 충족시키지 못하였으며, 이러한 이유로 파라핀 고화 공정은 활용할 수 없게 되었다. 따라서 기존 고화 공정에 대한 문제점들을 종합하여, 그림 5에 나타내었다.

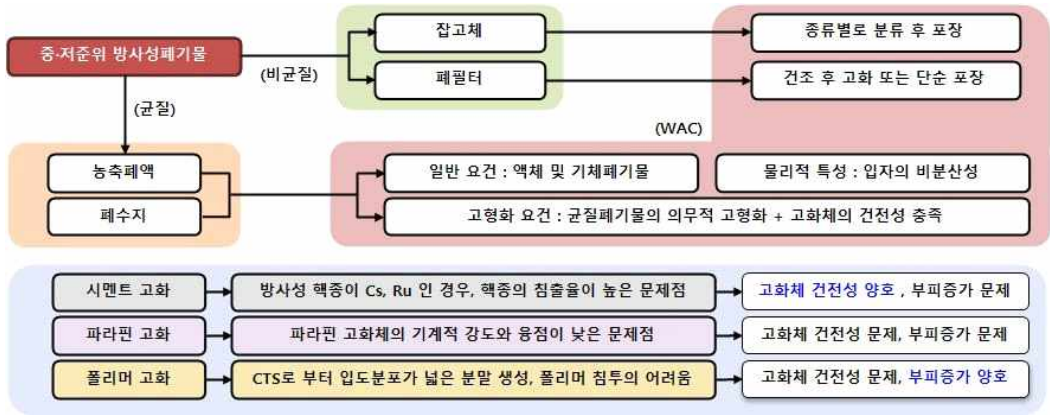


그림 5. 중·저준위 방사성 폐기물의 처리/처분에 대한 기존 고형화 기술의 문제점

라. 고형화 기술의 개선방안

상기 내용 들을 종합하면, 다음과 같이 정리할 수 있다. 대상 폐기물인 분산 특성을 갖는 분말 방사성폐기물들은 국내의 처분장 인수조건을 충족하기 위해, 이를 비분산성이 되도록 고형화/안정화를 통해 처분이 가능한 형태로 전환해야 된다. 이때 분말 방사성폐기물들을 시멘트 고화와 같이 단순 고화처리 할 경우는 초기 방사성폐기물의 부피보다 최종 발생하는 방사성폐기물 고화체의 부피가 크게 증가하는 문제점을 가지고 있다. 그러므로 시멘트, 파라핀, 폴리머와 같은 기존의 고화방식에서의 장점을 최대한 활용 및 적용해야 된다. 따라서 다음 제3절에서 고려될 감용화 기술과 더불어 부피 증가 문제를 개선하고, 고화체의 건전성을 확보할 수 있는 방안을 강구해야 된다.

- 시멘트 고화와 같이 방사성폐기물을 단순 고화방식은 초기 방사성폐기물의 부피보다 최종 방사성폐기물 고화체의 부피가 크게 증가하는 문제점을 가짐.
- 농축폐액 건조 분말을 함유한 파라핀 고화의 경우 감용비가 높지만, 파라핀 고화체의 구조적 건전성이 매우 불량하여 방사성핵종 누출의 문제점을 가짐.

제 3절. 방사성폐기물의 펠릿화(Pelletization) 기술

1. 방사성폐기물의 펠릿화 기술 현황

원자력시설에서 발생된 모든 방사성폐기물은 인간 생활 환경권으로부터 격리시켜 중앙집중 관리되도록 영구처분장에 처분하게 된다. 이때 방사성폐기물 관리비용은 발생자들이 부담하며, 산업통상자원부 고시 제 2022-11 호(2022. 1. 11.)에서는 “중·저준위 방사성폐기물 관리비용은 200L 드럼 기준 1,511 만원이며, 「중·저준위 방사성폐기물 처분시설의 유치지역 지원에 관한 특별법」에 의한 유치지역 지원수수료는 별도로 납부하여야 한다.” 라고 명시되어 있다. 따라서 방사성폐기물 관리비용 및 기타 수수료에 대한 발생자들의 큰 부담이 예상된다. 이로 인하여 국가 인도규정과 처분장의 인수조건을 준수하면서, 방사성폐기물의 감용화를 통해 폐기물 처리 및 처분 비용에 대한 절감이 매우 시급한 실정이다.

한편 원자력시설에서 발생하는 분산성/입자성 방사성폐기물(농축폐액의 건조분말, 페이온 교환수지, 감손 우라늄 폐기물, 슬러지 및 소각재 등)을 처분하기 위해서는 다양한 고화 매질을 이용해 혼합(mixing)하는 방식으로 고화할 수 있다. 특히 이 방법은 분자들 내로 고화 매질의 침투가 어렵고 방사성폐기물의 함입률 제한으로 인하여 최종 고화체의 부피가 증가하는 문제점을 필연적으로 가지고 있다. 그러나 방사성폐기물 분말은 펠릿화(Pelletization) 및 과립화(Granulation)를 통해 응집 덩어리(Agglomeration)로 전환하고, 이들 폐기물 덩어리들 사이 공간에 액상의 고화매질을 주입해 고화하는 경우 부피 증가 문제를 해결할 수 있다. 즉, 기존 혼합방식에 비교 시 감용 효과는 수배 정도로 매우 높을 것이다.

가. 분말의 펠릿화 기술 분석

입자성/분산성의 미세 분말의 압축 성형은 바인더(Binder)와 같은 성형제재와 혼합하여, 펠릿, 과립 및 정제 등으로 성형하는 것이 일반적이다. 이들은 높은 압축력을 가압하는 방식으로서, Single Station, Rotary Tablet Press, Roller Compaction, 그리고 Granulation 등이 있으며, 방법별 각기 다른 장단점들을 갖고

있다. 한편 펠릿화(Pelletization)는 분말의 특성을 유지하면서, 미세 분말들이 서로 뭉치게 하는 공정이다. 이때 커다란 점착성의 과립물로 형성될 수 있도록 기계장치를 이용하며, 해당 방법으로는 Forced screening, Compaction, Extrusion, Fusion method 등이 있다. 이들 중 미세 분말의 압축 성형은 바인더(Binder)와 같은 성형제재와 혼합하는 방식에는 롤 컴팩션(Roll Compaction), 롤 브리켓팅(Roll Briquetting), 타블렛(Tableting) 등의 방법이 있다. 한편 Srinivasan Shanmugam(2015)은 「Granulation techniques and technologies: recent progresses」에서 “과립형으로 성형하는 방법은 분말의 상태에 따라 습식 과립법과 건식 과립법으로 분류”라고 기술하였으며, 해당 개략도를 그림 6에 나타내었다[33].

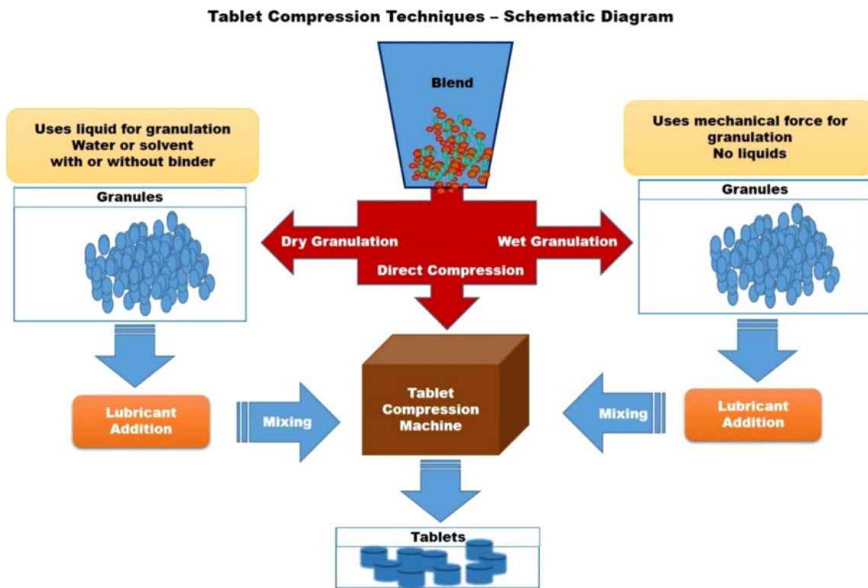


그림 6. Schematic diagram of tablet compression techniques

즉, 일반적으로 과립화공정은 건조와 습윤 공정으로 나눌 수가 있으며, 건조 과립화 공정은 건조 분말만을 롤 컴팩션 또는 일축 다이 컴팩션(uniaxial die compaction) 방식을 이용해 압축 성형하게 된다. 이 공정은 용액상태의 결합제나 건조과정이 필요치 않으며, 고밀도와 고강도를 갖는 과립물(또는 펠릿)을 생산하기 위해 일반산업에서 많이 이용되고 있다. 또한, 장치의 구성이 간단하고, 다른

공정과 비교하였을 때 비용 및 경제성 측면에서 우수하며, 수분과 온도에 민감한 물질의 취급하는 경우에도 매우 용이함을 보인다. 한편 습윤 공정에 대하여, Srinivasan Shanmugam(2015)은 “타정 방식은 프레스의 타정 작업으로 분말의 분산이 발생하여, 주변 환경에 이차적인 오염을 발생” 시킬 수 있다고 언급했으며, 이어서 “롤 컴팩터 방식을 적용할 수 없는 문제점과 건식 과립법보다 설비에 대한 비용이 많이 들고 공정이 복잡하다는 문제가 발생” 할 수 있는 것에 대한 문제점들을 언급하였다[33].

본 연구에서는 분말의 부피감용, 성형된 과립물의 건전성, 원자력시설에서의 활용 및 적용을 목표로 하고 있으며, 따라서 다음 5가지의 사항을 고려해 롤 컴팩션(roll compaction) 기술이 선정되었다. 첫째 분말의 성형 시 성형제재를 사용하지 않을 수 있어야 한다. 둘째 성형된 과립물(덩어리 또는 펠렛)의 입도 크기가 일정하게 유지할 수 있어야 한다. 셋째 성형된 과립물의 밀도와 질량이 일정 수준의 이상으로 유지할 수 있어야 한다(고감용화). 넷째 성형장치의 설치와 유지보수가 용이해야 한다(정차의 크기 및 구조로 제작 가능). 다섯째 과립물의 성형 전후로 별도의 처리 및 부대장치가 필요하지 않아야 한다. 따라서 상기와 같은 고려사항들을 전제로 하면서, 분말형 방사성폐기물의 감용과 압축 성형에 대한 이론적 고찰을 통해 장치 및 운전에 영향을 미치는 인자들을 살펴보고자 하였다.

나. 롤 압축 기술과 Johanson Model

롤 프레스 брикет(Roll press briquetting) 또는 롤 брикет(Roll briquetting)은 롤 컴팩션(Roll compaction)에서 도출되었으며, 해당 기술을 분석하기 이전에 우선적으로 롤 컴팩션에 대한 이해가 필요할 것이다. 한편 J.R. Johanson(1965)은 「A Rolling Theory for Granular Solids」에서 롤 “컴팩션(compaction)은 1960년대에 금속판을 만드는 데 널리 이용되었다.” 라고 언급하고 있으며, 이어서 “분말의 брикет 제조가 요구되자 롤 프레스의 설계와 운전을 위하여, 물질의 특성, 프레스 크기 및 운전변수들에 대한 수학적 모델을 만들었다.” 라고 밝혔다. 또한, Johanson은 “기하학적 변수와 롤 사이에서 연속적인 전단변형을 겪는 물질의 소성 항복 법칙들과 관련하여 응력 함수” 를 설명하였다[34]. Yus Aniza Yusof 외 3인(2005)은, 「Roll compaction of maize powder」에서 Johanson의 이론은 “분말

거동이 분명하거나 쉽게 결정할 수 있는 방식으로 몇 개의 영역으로 나눌 수 있다.” 라고 언급하였다. 이때 영역 구분 및 설명은 그림 7과 같이 나타내었으며, 아래와 같은 사실에 기초하였다[355].

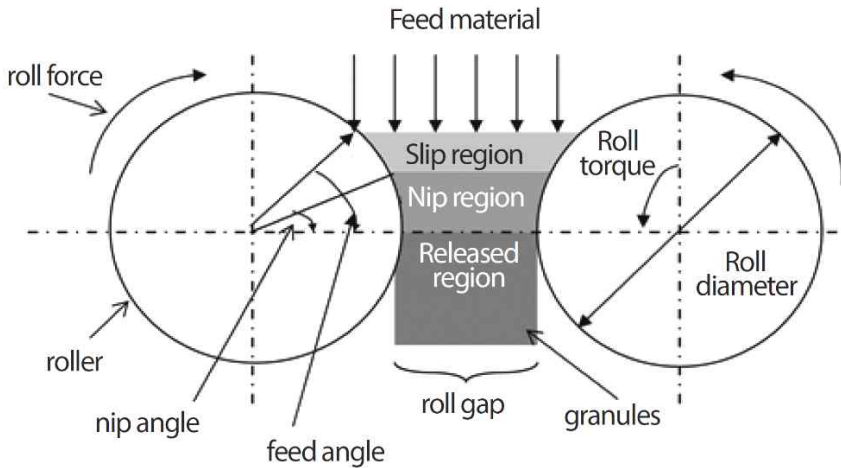


그림 7. 롤 컴팩션의 개념도 및 Johanson 모델의 영역 구분

- 우선 분말은 일정한 압력으로 스크류 공급장치나 중력에 의한 공급장치로 두 개의 롤 사이의 영역 내로 주입된다. 여기서 분말은 분말 상태의 결보기 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 회전 속도로 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.

특히 분말의 펠렛화를 위해서는 롤 컴팩션 장치의 설계 및 운전에 대한 영향 인자가 매우 중요하다. 사용된 롤 컴팩터(Roll compactor)의 이론적 토대를 제시한 Johanson 롤 컴팩션 이론은 다음과 같이 미끄러짐 영역(Slip region), 잘림 영역(Nip region), 배출 영역(Release region)으로 구분할 수 있다.

- Slip region : 두 개의 롤 사이로 공급되는 분말이 들어가는 영역
- Nip region : 롤 회전에 의해 분말 압축이 시작되어 롤에서 배출되기 전까지의 영역
- Release region : 압축 되어진 분말이 롤에서 부터 배출되어 나오는 영역

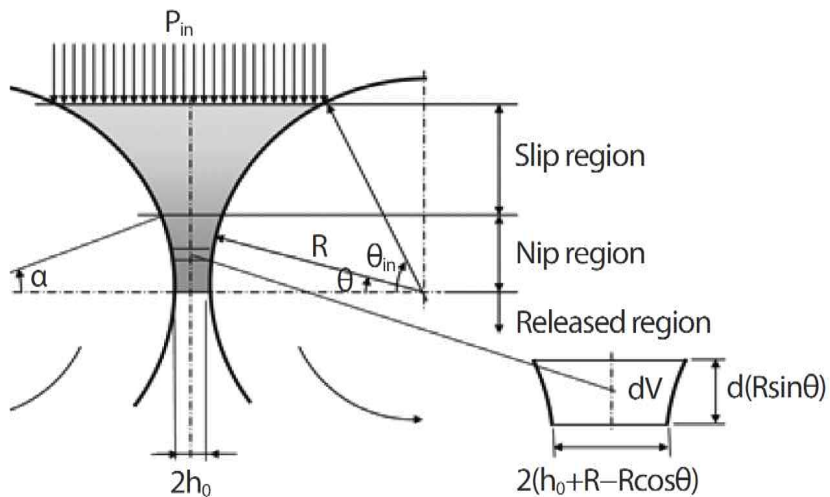


그림 8. Johanson의 롤 컴팩션 이론에서 θ 각도에 따른 영역 구분

Johanson의 롤 컴팩션 이론에서 그림 8 처럼 θ 각도에 따라 미끄러짐 영역과 잘림 영역이 구분된다고 설명하고 있다. 그리고 잘림 각에서 미끄러짐 영역과 잘림 영역에서의 압력구배(pressure gradient)가 동일하다고 제안하였다. 이에 따라

Bindhumadhavan 은 잘림 각은 미끄러짐 영역에서의 압력 구배와 잘림 영역에서의 압력 구배가 교차하는 점이며, 그 잘림 각을 계산하는 식을 유도하였다[36]. 그 결과 잘림 각은 물질의 압축성 계수, 물질의 흐름 특성, 롤 직경(roll diameter), 롤 간격(roll gap distance)에 의존함을 밝혔다.

앞서 롤 컴팩션에 영향을 미치는 인자들에 대하여, 개념적으로 기술하였지만 보다 구체적으로는 표 12 에서 보듯이 크게 운전변수, 장치의 기하학적 변수 및 물질의 특성으로 대별 된다. 장치의 기하학적 운전변수로는 두 롤의 사이 간격(roll gap), 롤의 직경(diameter)과 너비(width)가 있다. 이어서 주요 운전변수로는 롤 회전속도(Roll speed), 두 개의 롤 사이의 간격을 일정하게 유지 시킬 수 있는 롤 가압력(Roll force), 분말의 공급량(Feed pressure) 및 롤 토크(Roll torque) 등이 있다. 그리고 분말을 구성하는 물질의 특성으로는 분말의 압축성(Mixture composition), 분말 크기 및 마찰율(friction ratio) 등이 있다. 특히 마찰율은 두 개의 롤 회전속도의 비(front roller speed/back roller speed) 로서, 분말과 롤 표면 사이의 슬립스틱(Slip-stick) 거동에 영향을 준다. 또한, 간접적으로 펠렛 성형에 매우 중요한 접착력과 마찰력에 영향을 줄 수도 있다. 따라서 롤 컴팩션의 설계(design)와 운전(operation)에 있어서, 영향 인자들 중 장치의 운전변수(성형압축력, 분말의 주입속도, 롤의 회전속도), 장치의 기하학적 변수, 그리고 물질의 특성들을 고려해야 할 것이다. 이때 Isotropic, Cohesive, Compressible 과 같은 물질의 특성도 함께 고려하여야 한다.

표 12. 롤 컴팩션의 매개 변수별 영향인자

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

다. 펠릿화를 위한 분말의 입도 분류

분말의 물리적 특성 중 물질의 입자 크기는 매우 중요하며, 압축성과 매우 밀접한 연관이 있다. 이는 롤 컴팩션의 영향 인자 중 하나인 물질의 특성으로서, 입자의 크기 및 형태가 장치 운전 및 성형과정에서 큰 변수로 작용할 수 있기 때문이다. 하지만 일부 화학 조성(방사성 슬러지) 등에 관한 연구만 존재할 뿐, 성상 관계 또는 입자 크기 등의 물리적 특성에 관한 연구는 전무 한 상황이다. 따라서 자체처분이 불가능한 크기의 입자가 포함된 처분부적합한 분말 방사성폐기물의 입도 크기 및 분류에 대하여, 충분히 고려할 필요성이 있다고 판단되었다.

한편 한국광물자원공사(2007)의 「토양오염 및 처리공학」에서는 “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 구분” 하고 있다[37]. 이때 점토(Clay)는 입자 지름이 0.002 mm 이하의 미세토양을 말하며, 미사(Silt)는 단위 무게당 표면적이 가장 넓은 특징을 가지고 있어 수분 및 양분 보유력 매우 강하다. 이러한 토양 입도의 구분은 미국 농무부(United States Department of Agriculture, USDA) 기준, 국제(International) 기준, 그리고 구소련(Union of Soviet Socialist Republics, USSR) 기준이 있으며, 각 나라에 따라 다소 차이가 있다. 한편 주로 미국 농무부(USDA)에서 분류 방법(Soil taxonomy)이 많이 이용되고 있으며, 우리나라에서는 1975년에 개정한 미국 농무부(USDA)의 분류 방법을 채택하여 사용하고 있다[38]. 아래 표 13에서 보듯이 미국 농무부(USDA)에서 제시 하는 토양의 입도 크기 분류이다. 이때 토양의 주 구성요소인 점토, 실트, 모래를 기준으로 입도를 분류하고, 이어서 각 구성요소의 입도 크기를 정리하였다.

표 13. 미국 농무부(USDA)에서 제시하는 토양의 입도 크기 분류 [Unit : mm]

점토(Clay)	실트(Silt)	모래(sand)	
		세사	조사
≤ 0.002	0.002 ~ 0.02	0.02 ~ 0.2	0.2 ~ 2.0

2. 기존 펠릿화 기술의 문제점 및 개선방안

가. 기존 펠릿화 기술의 문제점

앞서 고화 고정화 문제점을 제시할 때 언급한 폴리머(Epoxy Resin) 고화 공정은, 기존 공정의 문제점들을 보완 및 해결할 목적을 가지고 도입되었다. 이러한 이유로 농축폐액을 그래놀화를 통해 감용할 수 있는 CTS(Concentrates Treatment System)와 폴리머 고화 공정이 채택되었다. 이는 농축폐액을 완전히 건조시키는 과정에서 분말을 일정한 크기의 과립물(Granules)로 만들고, 이들을 드럼 내에 충전 시켜 과립물들 사이의 공간에 액상의 폴리머를 주입해 경화시키는 기술이다. 기술적인 측면에서 방사성폐기물의 부피 감용화와 방사성 고화체의 건전성 확보 측면에서 매우 타당성을 갖는 기술이라 평가되었지만, 운영상에 문제점이 많았다. 특히 CTS 에서 생성되는 과립물의 입도 분포 문제, 그리고 폴리머를 드럼에 충전 시 미세한 입자로 인해 고화 매질이 과립물 내로 주입되지 못하는 문제점을 가지고 있다.

국내에서는 과거 한수원 중앙연구원에서 타블렛(Tableting) 기술은 활용한 사례가 있었지만, 다음과 같은 문제점을 가지고 있었다. 첫째 단위 시간당 처리량이 상대적으로 적으며, 원전 해체폐기물과 같이 단기간 대량으로 발생하는 폐기물을 처리하기에는 매우 역부족이었다. 둘째 타블렛 기술의 성능을 향상 시키기 위해서는 부속 장치를 포함하여, 규모가 매우 큰 장치가 요구되었다. 셋째 분산 특징을 가지는 미분말의 방사성폐기물로 인하여, 주변 지역의 오염 가능성이 높았다.

나. 펠릿화 기술의 개선방안

(1) 기존 고형화 공정과 펠릿화 기술의 접목

앞서 선정된 대상 폐기물들은 입자성/분산성의 분말 방사성폐기물이기 때문에 유동 및 분산 특성을 갖는다고 언급되었다. 이들 방사성폐기물은 폐기물 인수기준(WAC)에서 요구하는 바와 같이 비분산성이 되도록 안정화/고형화하여야 한다. 이때 최종 방사성 고화체의 부피 증가와 같은 기존의 문제를 해결하고, 구조적 건전성을 확보할 수 있는 고화체를 제조할 필요성이 있다.

따라서 본 논문에서는 CMDS 를 통해 건조된 농축폐액 분말을 파라핀과 혼합하는 ‘파라핀 고화 공정’ 과 CTS 를 통해 건조 및 과립물로 형성해 이를 에폭시 수지로 경화하는 ‘폴리머 고화 공정’ 의 장점들을 극대화하고 이를 활용하기로 판단하였다. 특히 타블렛 대신 롤 브리켓(Roll Briquetting) 기술을 선정해 롤 컴팩션을 통한 펠렛화를 수행하며, 최종적으로 펠렛화를 통한 폴리머 고화 방안을 고안해 냈다.

펠렛화는 건조된 분말을 성형 압축하는 기술로서, 이를 통해 제조된 펠렛은 CTS 에서 제조된 과립물 보다 고밀도 및 고강도의 특성을 갖는다. 또한, 일정한 크기와 모양을 가지고 있기 때문에, 이들을 드럼 내에 충전 후 펠렛들 사이 공극에 폴리머의 주입이 쉽다. 한편 폴리머 고화 매질의 소수성, 고점착성, 그리고 경화 특성을 고려해 고화체를 제조한다면, 최종 제조된 펠렛 폴리머 고화체는 구조적 건전성이 매우 우수할 것으로 판단되었다. 특히 기존의 고화방식에 비해 감용비 측면에서 매우 우수함을 가질 수 있으므로, 펠렛화를 통한 폴리머 고화 방법은 분말 방사성폐기물의 고화처리 방안으로 매우 적합하다고 판단되었다.

(2) 처분용 고건전성 용기(HIC)와 펠렛화 기술의 접목

일반적으로 원전운영 및 해체 시에 발생하는 방사성폐기물은 적절한 컨디셔닝을 거쳐 처분장 인수조건에 맞도록 고형화/안정화시켜 처분할 수 있다. 그러나 처분용 고건전성용기(High Integrity Contanier, HIC)의 경우 처분장의 일부 제한조건만 충족한다면 방사성폐기물을 단순 주입된 상태로 처분할 수 있다. 즉 HIC 용기는 방사성폐기물을 처분하였을 때, 처분장 폐쇄 후 300 년 간의 제도적 관리기간 동안 방사성폐기물 내의 어떠한 핵종들도 처분장 외부로 누출되지 않도록 특별히 제작된 용기이다. 그러므로 방사성폐기물을 고화체로 안정화시키는 방법과 HIC 용기를 사용하는 방법 두 가지 모두 다음과 같은 이점이 있다. 첫째 방사성폐기물의 외부 환경으로 누출되지 않도록 높은 건전성 및 내침출성을 갖는다. 둘째 처분장의 제도적 관리기간 동안 효율적이면서 안전한 관리를 할 수 있다. 셋째 처분장의 용량 및 효율적인 운영 측면에서 매우 타당성이 있다.

또한, 방사성폐기물의 처분을 위해서는 다음과 같은 사항을 고려해야 된다. 첫째 국가적 차원의 노력이다. 이는 처분부지의 확보와 건설 그리고 운영 측면에서

처분장의 성능을 유지하되, 점진적으로 처분량을 늘려가는 노력을 말한다. 이러한 노력이 없다면 어렵게 확보한 처분장의 수용 능력은 조기에 포화 될 것이며, 제 2의 제 3의 처분장이 추가로 요구될 것이다. 둘째 방사성폐기물 관리비용 부담이다. 이는 200 L 드럼당 처분관리비용은 약 16,000 천원(처분장 유치지역 지원수수료, 부가세 포함)으로 폐기물발생자에게 큰 부담이 될 수 있다. 셋째 방사성폐기물의 컨디셔닝 및 처리업무의 위험성(작업자의 피폭, 부산물 방생 등) 이다. HIC 용기나 재래방식의 고형화/안정화에 의한 처분방식들은 처분장을 조기에 포화시킬 수가 있다. 그러므로 앞서 언급한 사항들을 고려하여, HIC 내의 분말 주입 방법 개선과 상용화 될 수 있는 고감용화 기술개발이 필요한 시점이다.

따라서 분말 방사성폐기물을 단순히 HIC 용기 내에 주입하는 방식(기존), 폐기물 분말을 펠릿으로 성형하고, 펠릿들 사이 공극을 폐기물 분말로 HIC 용기 내에 주입하는 방식(Method-1), 그리고 폐기물 분말을 펠릿으로 성형하고, 펠릿들 사이 공극을 폴리머로 고화하는 방식(Method-2)을 고안해 냈다. 해당 개념의 이해를 돕고자 그림 9와 같이 나타내었다. 그림 9에서 보듯이 Method-1은 HIC 용기 내에 펠릿을 충전 시키고, 이후 펠릿들 간의 사이 공극을 분말 폐기물을 주입하는 경우이다. 해당 방법은 펠릿화 기술을 사용해 부피 감용을 극대화하며, 현재 국내에서 사용 중인 HIC 용기를 사용하기 때문에 현실성 높다. Method-2는 HIC 용기 내에 펠릿을 충전 시키고, 이후 펠릿들 사이 공극을 액상의 폴리머를 주입하는 경우이다. 해당 방법은 처분 비용 관점에서는 부정적일 수 있으나, 소수성을 가지면서 고 점착성을 갖는 에폭시 수지를 사용해 고화시킨다면 구조적 건전성 측면에서는 매우 우수할 것으로 사료 된다.



그림 9. 펠릿화의 활용 방안 및 HIC 용기에 대한 적용

제 3장 . 방사성폐기물 분말의 펠릿화 평가

제 1절 . 모의 폐기물 시료의 물리·화학적 특성

1. 모의 시료의 조성

본 논문에서 사용될 모의 폐기물 시료는 각종 문헌과 발표자료를 참고하여, 무기화학적 조성에 대한 조사를 수행하였다. 해당 내용을 정리하여, 한국에서 채취해 분석한 토양, 콘크리트 그리고 제조한 농축폐액 분말을 구성하는 화학성분을 표 14에 정리하였다. 표 12에서 보듯이 토양에는 상대적으로 철(Fe) 성분이 8.5 w.t.%으로 적었으며, 실리카(Si)와 알루미늄(Al) 성분이 각각 63 w.t.%, 23 w.t.%으로 주를 이루고 있다. 이는 Al_2O_3 , Fe_2O_3 와 비교해 CaO, MgO, K_2O , Na_2O 가 다소 적게 함유된 것으로 보아 황토보다는 적갈색의 토양에 가깝다고 볼 수 있다[39]. 그리고 콘크리트 폐기물은 또한 상대적으로 철(Fe) 성분이 5.61 w.t.%으로 적었으며, 실리카(Si)와 칼슘(CaO) 성분이 각각 21.03 w.t.%, 63.38 w.t.%으로 주를 이루고 있다. 이는 콘크리트 폐기물의 경우 시멘트 모르타르(mortar)에 첨가제로 모래(Sand)나, 거친 자갈(Gravel)들이 포함된 것이 주된 이유라고 판단된다[40]. 한편, 농축폐액 분말의 경우는 붕소(B)가 주를 이루며, 실리카(Si), 아연(Zn) 그리고 칼슘(Ca)이 상당량 함유되어 있다[41]. 이는 가압경수로에서는 붕소가 열중성자 제어봉으로 사용되며, 이러한 이유로 원전 운영폐기물로 발생하는 폐액 중에는 붕산이 상당량 함유되어 있기 때문이다.

표 14. 모의 시료의 무기화학 조성 [Unit : w.t.%]

Sample	Fe_2O_3	Al_2O_3	SO_2	SiO_2	CaO	TiO_2	B_2O_3	Na_2O	K_2O	MgO	ZnO	(w.t.%)
토양	8.5	23		63					3	2.5		100
콘크리트	5.61	5.31	2	21.03	63.38			0.07		2.6		100
농축폐액		10		13	19	4	30	2		9	13	100

2. 모의 시료의 밀도 및 수분함유도

수분함량을 측정함에 있어, 먼저 채취한(또는 제조) 분말 시료를 상온(20 ± 5 °C)에서 72 시간 동안 자연 건조하였다. 이후 건조 완료된 각 분말시료를 대상으로 최종 수분함량을 확인했다. 그리고 분말의 밀도는 50 ml 원통형 플라스크에 분말을 주입하고 질량(무게)을 측정하였다. 측정 결과로부터 질량의 값을 부피의 값으로 나누어 계산하였다[35]. 수분함량 측정 결과 토양 2.8 % (w.b.), 콘크리트 6.7 % (w.b.), 농축폐액 8.5 % (w.b.) 으로 측정되었다. 이때 수분함량을 조절함에 있어, 폐기물별 다량(약 10kg)의 시료를 사용하기 때문에 5 %로 기준을 두고 ± 3.5 % 범위 내에서 너프하게 조절되었다. 그리고 겉보기 밀도 측정결과 토양 $1.23 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, 콘크리트 $1.01 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, 농축폐액 $0.76 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 으로 측정되었다. 토양과 농축폐액 분말의 밀도 차이는, 추후 펠렛화 및 감용비 측정 시 크게 두드러질 것으로 예상되었다. 추가적으로 본 논문 내용 중 달리 언급이 없을 경우 수분함량 값은 습식 질량 기준이며, 밀도 값은 겉보기 밀도 기준이다.

3. 모의 시료의 입자크기

분말 시료별 입도 크기 및 분포 측정은 입도분석기(LPSA, Laser Particle Size Analyzer, CILAS 1190 Liquid, Cilas, Madiakon, France)를 이용해 분포하였다. 이때 아이소프로판올(isopropanol)에 분말을 분산시킨 후 분석기로 입자 크기를 측정하였다. 또한 측정 결과로부터 각 분말 입자 크기 및 누적 분포율을 비교 분석하였다. 분말의 입자 크기 분포 측정 결과는 그림 10 과 같다. 그림 10 의 (a)에 나타난 바와 같이, 입자 크기의 누적 분포에서 토양과 콘크리트 시료는 평균 입자 크기는 $56 \mu\text{m}$ 이상이었다. 하지만 농축폐액(concentrated waste) 분말의 경우 평균 입자 크기가 $14 \mu\text{m}$ 으로 보다 작은 크기의 입자를 포함하고 있었다. 이와 같이 내용을 유형별 누적 입도 분포 비율을 요약하여, 표 15 에 나타내었다. 또한 그림 10 의 (b)의 밀도 분포에서도 농축폐액 분말이 작은 크기의 입자가 대부분을 차지하고 있음을 알 수 있었다. 따라서 입자 크기와 분포를 고려할 때 농축폐액 분말 보다 토양과 콘크리트 분말 입자가 를 컴팩션에 의한 성형 가능성이 높다고 판단했다[42,43].

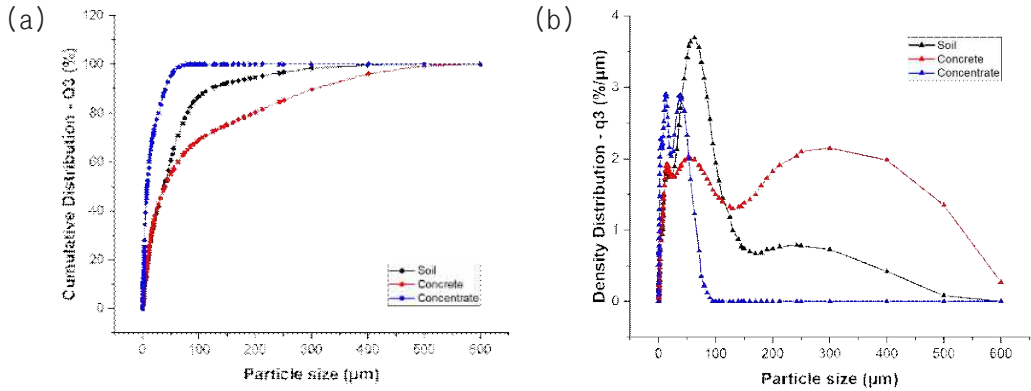


그림 10. 모의 시료별 입자 크기 분포 - (a) 누적 분포 (Q3) [Unit : %], (b) 밀도 분포 (q3) [Unit : %/μm]

표 15. 모의 시료별 평균 입자 크기 및 누적 분포율 [Unit : μm]

누적 분포율	10 %	50 %	100 %	평균 입자 크기(μm)
토양(Soil)	4.71	37.58	121.05	56.10
콘크리트(Concrete)	4.15	39.92	303.55	99.53
농축폐액(Concentrated waste)	0.78	8.17	40.34	14.75

4. 모의 시료의 입자 형태

분말 시료별 입자 표면의 3차원 미세구조 및 형태를 알아보기 위해 장방출 주사전자현미경(FE-SEM, Field Emission Scanning Electron Microscope, JSM-7000F, JEOL, Tokyo, Japan)을 이용하였다. 이때 SEM 이미지를 얻기 위한 샘플은 금으로 코팅된 스텝(stub)과 스퍼터링(sputter)에 장착하여 준비하였다. 그리고 SEM 관찰 조건은 가속 전압 15 kV, 거리 10 mm 이었으며, 각각의 배율에서 관찰된 분말의 입자 구조를 확인하였다. 검경 결과 시료별 SEM 사진을 그림 11에 나타내었다. 그림 11에서 보이듯 추출된 분말의 입자는 토양(a)과 콘크리트(b) 모두 위치상에서 격변(a locally turbulent)이 있는 자연 미세구조(natural microstructure) 보다는, 높은

다공성(high porosity)을 가지는 무질서한 골격(skeletal) 미세구조를 보였다. 그리고 토양 입자보다 콘크리트 입자가 불규칙한 다각형 모양을 더 많이 가지고 있었다. 특히 콘크리트 입자의 경우 많은 입자가 다량의 작은 입자를 포함하는 plerospheres 임을 확인할 수 있었다. 하지만 농축폐액(c) 분말의 형태는 입자들끼리 서로 뭉쳐지기에 어려운 구슬형으로 보임에 따라 압축 성형이 상당히 어려울 것으로 보였다[44]. 이는 모의 슬러지를 제조하기 위하여 시판되는 미세한 분말상의 무기 화학약품을 사용한 것에 기인하는 것으로 판단되었다.

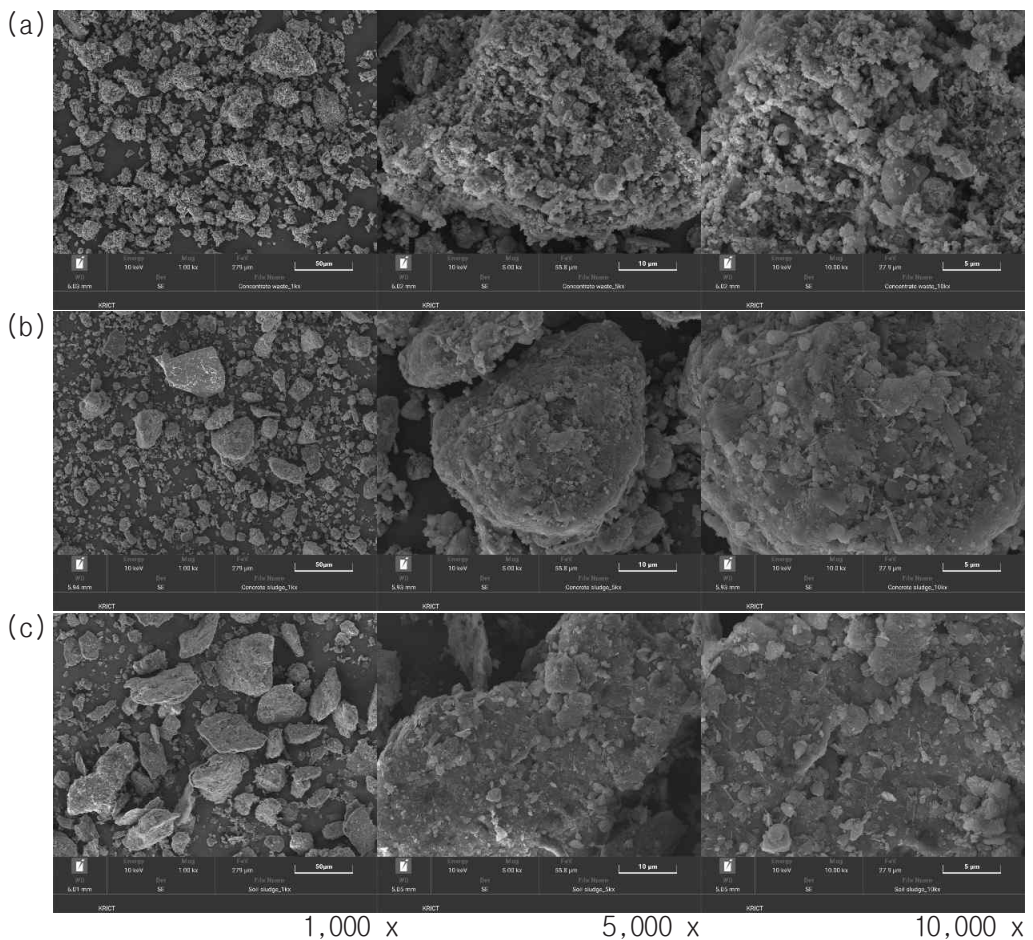


그림 11. 모의 시료의 SEM 촬영 이미지 - (a) 토양, (b) 콘크리트, (c) 농축폐액

5. 모의 시료의 물리·화학적 특성 분석

롤 컴팩션(roll compactor)을 통한 압축 성형을 위하여, 다양한 조건으로 성형을 시도하였지만 농축폐액 분말의 경우 상당한 어려움이 있었다. 특히, 성형압축력(HP)은 고정시키고, 롤 회전 속도(RS)와 분말 주입속도(FS)를 달리하여, 성형되는 조건을 찾으려는 시도를 수행하였다. 하지만 특정 조건하에서 성형이 되었다고 하더라도, 장치의 운전조건에 따른 펠릿화 경향을 시각적으로 표현하기에는 데이터 값이 충분하지 않았다. 해당 문제의 주된 이유는 농축폐액 분말이 토양 및 콘크리트 분말보다 입자 크기가 미세하며, 특히 부피 밀도가 낮기 때문이다[45,46].



그림 12. 특성 분석 시 사용된 모의 시료의 모습

한편 롤 컴팩션을 이용한 펠릿화 성형에 있어 철(Fe) 성분이 많을수록 또는 분말 입자의 크기가 작을수록 압축 성형에 어려움이 있는 것으로 알려져 있다[47]. 그러므로 각 분말의 무기화학적 조성 중 철 산화물의 함유율에 커다란 차이가 없는 것으로 보이기 때문에, 해당 상황은 입도 크기에 기인하는 것으로 판단되었다. 따라서, 롤 컴팩션에 의한 펠릿 제작 시 분말의 크기, 압축률, 밀도에 따라 성형물의 견전성에 미치는 영향이 크다는 것을 확인되었다. 또한, 이러한 펠릿의 견전성은 전반적인 폐기물의 감용비 및 고화체의 압축강도에 영향을 미칠 것으로 사료된다.

제 2절. 모의 폐기물 시료의 펠릿화 실험

1. 펠릿화 실험장치의 구성

분말 입자의 펠릿 성형 장치는 공정 변수와 조건들을 고려해 설계하였다. 설계된 롤 컴팩터(roll compactor)의 사양은 표 16 과 같으며, 그림 13 과 같은 롤 컴팩터를 제작해 입자성 분말에 대한 펠릿화 실험을 수행하였다. 또한 본 실험 연구를 위해 추가적으로 롤 간의 거리를 측정하는 장치(LVDT, Encoder), 펠릿 성형시 분말 공급을 균일하게 유지하기 위한 장치(Cheek plate), 그리고 롤 표면에서 성형된 펠릿의 탈착과 분리를 위해 Roll pockets 배열을 일렬 형태로 수정 보완하였다.

앞서 모의 시료의 물리·화학적 특성 분석을 통해 ‘롤 컴팩션을 이용한 펠릿화 성형에 있어 철(Fe) 성분이 많을수록 또는 분말 입자의 크기가 작을수록 압축 성형에 어려움이 있는 것으로 알려져 있다’ 라고 언급하였다. 이를 해결하기 위해서는 분말의 크기를 일정 크기 이상으로 조절해야 한다. 그리고 철 성분이 많은 경우에는 롤의 표면에 위치한 성형 포켓의 크기를 크게 하는 것이 일반적이다. 이 같은 경우 성형압축력을 높이는 것은 필수적인 방법이 아니지만, 성형압축력을 키우기 위해서는 장치(롤 컴팩터)의 규모가 커지는 문제점이 갖기 때문에 장치의 성능치($300 \text{ kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$) 내에서 실험을 수행하였다. 따라서 장치의 최적 운전기준을 시료별로 선정하기 위해 성형압축력(Hydraulic pressure), 롤 회전속도(Roll speed), 분말 주입속도(Feeding rate), 롤 간격(Gap distance) 등 장치 운전기준의 변화에 따른 펠릿의 밀도와 질량 그리고 제조 상태(건전성)를 확인하였다(그림 14 참조).

표 16. 롤 컴팩터(roll compactor)의 사양

Process Parameters		Process conditions	
Effective angle of friction	42 °	Roll gap	Max. 3 mm
Radius of the rolls	20 cm	Hydraulic pressure	Max. 300 $\text{kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$
Compact surface area	260 cm^2	Roll speed	Max. 6 rpm
Roll width	5 cm	Feeding rate	Max. 35 rpm
Roll pockets:			
- Length	0.945 cm		
- Height	0.65 cm		



그림 13. 사용된 롤 컴팩터(roll compactor)의 실제 모습

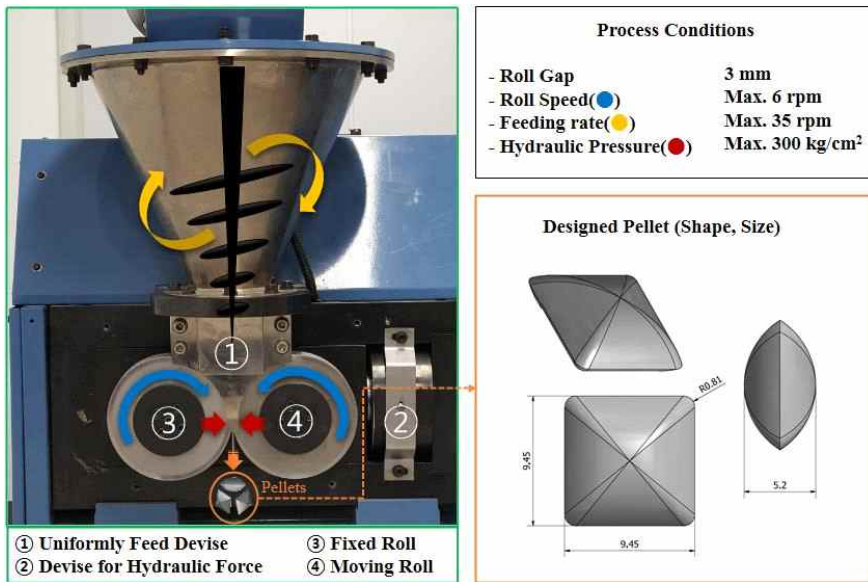


그림 14. 롤 컴팩터(roll compactor)의 세부 사항

2. 모의 시료의 압축성 평가실험

분말의 펠렛화에 앞서 분말 시료별 압축성(compressibility)을 측정하였으며, 일축 압축기는 그림 15와 같이 제작하여 사용하였다. 그림 15에서 보듯이 해당 일축 압축기는 분말 압축에 가하는 압력은 20 MPa(300 bar)이다. 이를 압축기 가압 판의 면적으로 고려해 환산한다면, 실제 분말 시료에 적용된 힘은 132.3 kN (13,460 kg_f)이다. 이때 원통형틀 내의 홀 부피는 16.642 cm³이며, 홀 내부의 직경과 높이는 각각 20 mm, 53 mm이었다.

시험 방법은 일축 압축기(Uniaxial compressor)의 원통형 틀 내에 분말 시료를 자유 낙하시켜 주입하고, 압축기의 상부 가압판을 상부에서 하부로 천천히 재하시키면서 분말 시료를 압축하였다. 이어서 만들어진 원통형 성형물의 제원을 측정하여, 압축 정도를 나타내는 압축성(compressibility)을 평가하였다.

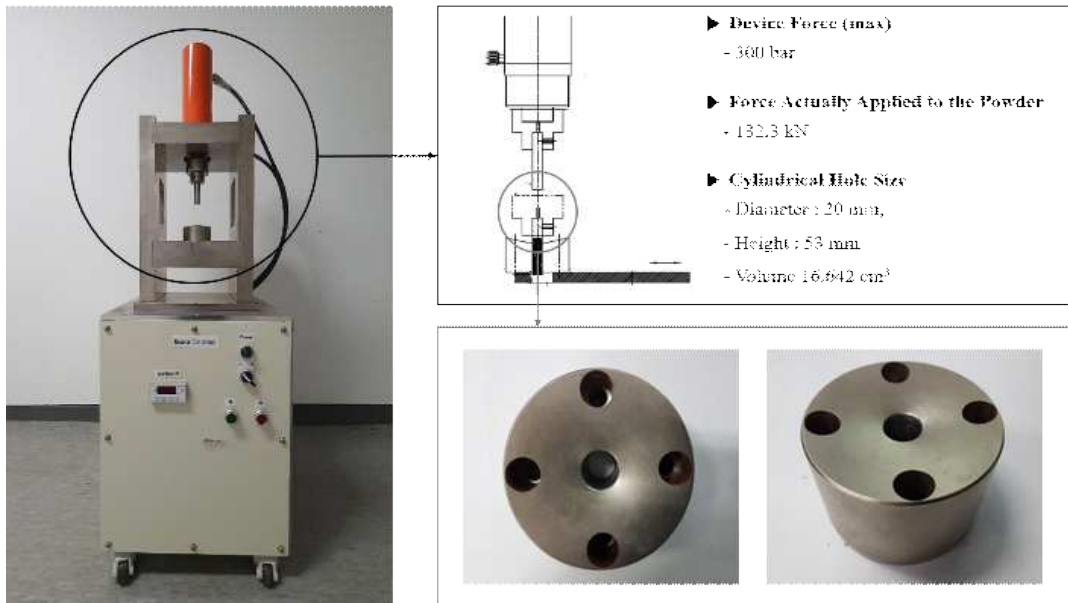


그림 15. 모의 시료의 압축성 평가를 위한 일축 압축기(uniaxial compressor)의 개념과 원통형 틀(cylindrical stainless steel die)

3. 모의 시료의 펠릿화 평가실험

펠릿의 형태는 사면체 2개가 서로 합한 모양이기 때문에 압축강도 측정을 위해서는 펠릿의 상·하 면을 수평이 되도록 하여야만 한다. 따라서 표 16의 (a)에서와 같이 표면처리 지그를 별도로 제작하였다. 그리고 (b)와 같이 지그 상·하면에 견고한 에폭시 접착제를 주입하여 그 사이에 펠릿이 놓이도록 하였다. 이어서 일정한 시간이 지나서 지그로부터 (c)에서 보이는 방법과 같이 펠릿을 제거하면 샘플의 형태가 된다. 이때 상·하 면이 견고한 상태가 되기 때문에 펠릿 내부의 결함에 의해 파괴되어 압축강도가 측정되게 된다.

즉 압축강도 측정 시 시편의 파괴 현상은 시편의 상·하 면에 의해 측정되는 것이 아니다. 펠릿에 가해진 압력에 의해 수직방향으로 배향(orientation)되면서 내부의 결함에 의해 파괴되는 것이다. 따라서 앞서 기술한 내용처럼 해당 표면처리는 전혀 펠릿의 강도에 영향을 미치지 않는다. 그러므로 이를 통해 제작한 펠릿 샘플을 가지고 압축강도 측정 실험을 수행하였다.

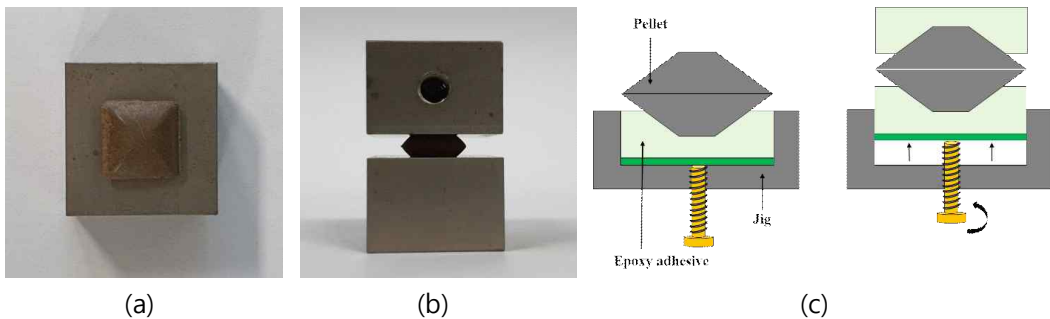


그림 16. Process for surface treatment of pellet - (a) Manufactured jig, (b) Pellets between jigs, (c) Compressive strength sample

제 3절. 모의 폐기물 시료의 펠릿화 실험결과 및 분석

1. 모의 시료의 압축성 실험결과 및 평가

분말의 성형도를 평가하기 위하여 일축 압축시킨 결과를 그림 17, 표 15에 나타내었다. 표 17에서 보듯이 일축압축 시킨 경우 성형물의 압축률이 197 ~ 212 % 이었다. 그리고 사전 실험을 통해 제조한 성형 펠릿의 압축률은 약 300 %에 가깝게 측정되었다. 이러한 차이는 일축 압축기에서 압축 시 공기가 퇴출되지 못하였기 때문이다. 성형 펠릿(9.45 mm)은 선압에 의한 압축이기 때문에 분말 내의 공기가 쉽게 이탈되었기 때문일 것으로 판단 된다. 또한 예비 실험 시 12.7 mm의 펠릿으로 성형하였을 때는 170 %의 상대적으로 낮은 압축률을 보였다. 따라서 분말 내의 공기가 상대적으로 쉽게 이탈될 수 있는 9.45 mm 크기일 경우, 충분히 펠릿으로 성형 가능할 것으로 판단되었다.



그림 17. 압축성 평가로 얻어진 원통형 분말체의 형상

표 17. Comparison of the compressibility of waste powder

시료 종류	수분함유율 (%)	압축상태	무게 (g)	높이 (cm)	압축 전후의 부피 (cm ³)		밀도 (g · cm ⁻³)	압축성 (%)
					Before	After		
토양	2.8	Before	19.3	5.3	16.6	-	1.17	197
		After		2.69	-	8.4	2.33	
콘크리트	6.7	Before	17.8	5.3	16.6	-	1.07	212
		After		2.5	-	7.85	2.27	
농축폐액	8.9	Before	12.6	5.3	16.6	-	0.8	237
		After		2.2	-	7.0	1.18	

2. 모의 시료의 펠릿화 실험결과 및 평가

가. 펠릿화 실험장치의 운전변수 평가

(1) Roll compactor - Hydraulic pressure

펠릿 성형용 롤 포켓(pocket)이 가공된 두 개의 롤 타이어 간에 가해지는 압력 (Agglomeration pressure)은 분말이 포켓내에서 성형되어지는데 필요한 절대적인 요소이다. 그래서 성형압축력이 낮을 경우에는 분말이 압축되지 못하여 펠릿으로 성형되지 않거나 펠릿의 강도가 매우 낮아 분말의 감용 효과를 기대할 수가 없다 [48]. 또한 분말의 특성(안식각, 벌크 밀도, 성형 압축 가능성 등)에 의해 성형압축력의 크기는 결정된다[49].

본 연구에서 사용한 장비는 유압방식으로 성형압축력을 가하는 형식의 압축기를 제작하였다. 성형 유압의 최대 압축력은 장치의 크기와 성능을 고려하여 설계상 $350 \text{ kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$ (33.2 t)으로 결정하였다. 33.2 t의 의미는 성형 롤을 회전시키는 축을 수평으로 가압하는 힘이란 의미이고, 가압하는 장치는 직경이 110 mm 축이므로 총 압축력(F)은 아래 수식(1)으로 계산된다.

$$F = 350 (\text{kg} \cdot \text{cm}^{-2}) \cdot \pi \cdot (11/2)^2 (\text{cm}^2) = 33,261 (\text{kg}_f) = 33.26 (\text{ton}) \quad (1)$$

우선 안전측면에서 성형과정에 적용되는 최대 압축력은 $290 \text{ kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$ (27.5 t)으로 제한하였다. 이어서 0 ~ $260 \text{ kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$ 으로 변화시키면서 펠릿을 성형하였으며, 그 결과를 그림 18에 나타냈다. 그림 18에서 보듯이 낮은 성형압축력에서는 펠릿의 강도가 예상하는 기대 값에 미치지 못하였다. 또한 분말의 주입속도와 롤의 회전속도에 무관하게 펠릿의 갭(두께)이 커지고, 롤 갭의 증가(부피 감용화를 위한 분말 공급량이 많음)로 인하여 높은 성형압축력을 필요로 함을 알 수 있었다[50]. 따라서 향후 펠릿을 성형함에 있어서 성형압축력을 $290 \text{ kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$ 으로 고정하여, 각 분말 시료의 압축 성형을 수행하기로 결정하였다.

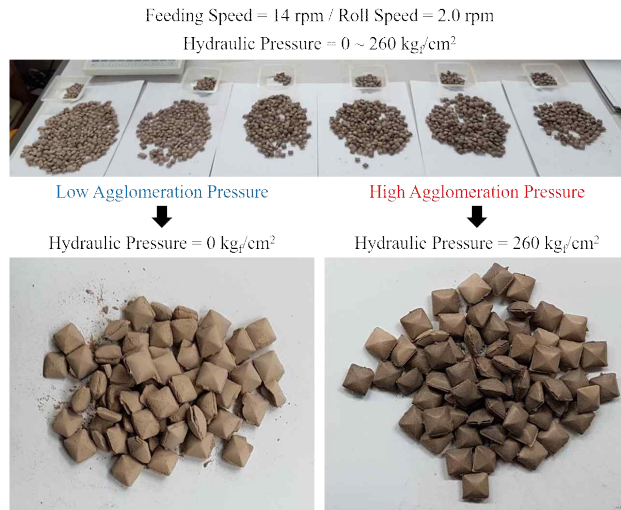
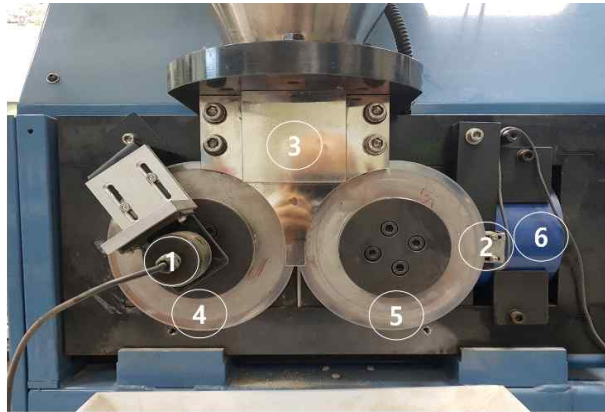


그림 18. 응집압력(Agglomeration Pressure) 변화에 따른 제조된 펠렛의 모습

(2) Roll compactor - Gap distance

롤 사이의 간격(Gap)은 두 개의 롤 사이의 거리를 말하며, 이는 롤에 가해지는 압력이 클수록, 분말의 주입속도(분말의 공급량)가 느릴수록 좁아지게 된다. 반면에 롤 회전속도가 너무 빠른 경우는, 두 개의 롤 사이의 간격이 매우 좁아지나 롤 포켓 내의 분말 주입량이 현저하게 떨어지게 되어 펠렛의 밀도와 강도는 기대하기 어렵다 [52]. 따라서 연구의 목적인 고감용화를 달성하기 위해 롤 사이의 간격을 좁게 유지시키면서, 펠렛의 밀도와 강도를 증가시켜야 한다. 이로 인하여 펠렛의 두께가 너무 두꺼워지거나, 펠렛 형태에 위상 차이가 나지 않도록 롤 간격(Gap)에 펠렛의 영향을 확인해야 할 필요가 있다.

따라서 펠렛 성형과정에서의 롤 간격을 측정하였다. 이때 움직임이 가능한 롤의 중심 회전축을 기준으로 하고, 고정된 롤의 중심 회전축과의 거리 변화를 측정하였다. 그리고 단순히 LVDT (Linear Variable Displacement Transducer, Z4-V25R)만으로도 롤 갭 측정이 가능하지만 정밀하게 측정하기 위하여, 그림 19와 같이 인코더 (Encoder)를 추가 설치하여 수행하였다.



- | | |
|--------------------------|-------------------------------|
| 1. Encoder 360 pls | 4. Fixed Roll |
| 2. LVDT | 5. Moving Roll |
| 3. Uniformly Feed Device | 6. Devise for Hydraulic Force |

그림 19. 롤 컴팩터에 부착된 LVDT 와 Encoder

이어서 콘크리트 분말의 펠릿 성형과정에서 성형압축력($290 \text{ kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$)은 고정시키고, 롤 회전속도와 분말 주입속도를 변화시키면서 롤 간격을 측정 한 결과를 그림 20에 나타내었다. 이때 롤 내로 주입되는 분말의 주입속도와 롤 회전속도가 증가하여도 롤 사이의 간격은 $-0.6 \sim +1.6 \text{ mm}$ 내에서 유지되고 있으며, 이는 3 mm 인 설계치 보다 낮은 값으로 펠릿 성형에 큰 영향을 미치지 않는 것으로 확인되었다.

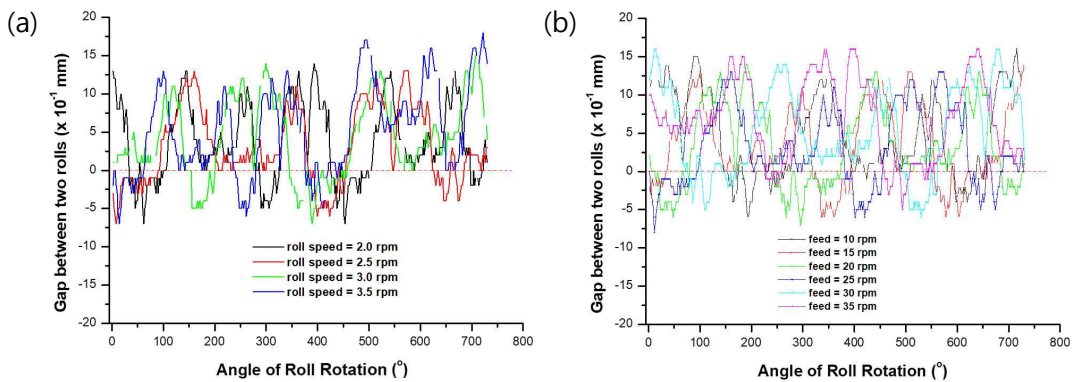


그림 20. 롤 회전 각도에 따른 두 롤 사이의 간격 변화 - (a) roll speed, (b) feeding rate [Unit : $\times 10^{-1} \text{ mm}$]

(3) Roll compactor - Roll speed

롤 컴팩터의 롤 회전속도는 분말의 단위시간당 처리량을 결정한다. 롤 회전속도가 증가하면 두 개의 롤 사이의 간격(Gap)은 벌어지게 되어 성형된 펠렛의 강도는 우수하지 못하다. 롤 사이의 간격을 일정하게 유지하면서 롤 회전속도를 증가시키는 경우, 성형되는 펠렛의 건전성(무게와 강도)은 분말 물질의 특성에 크게 영향을 받는다. 이는 상기 조건에서 펠렛 제조시 분말의 무기화학적 조성, 압축성, Bulk density에 기인하여, 분말 시료별 펠렛의 강도가 달라질 수 있다는 것이다. 분말의 주입속도(25 rpm)와 성형압축력($290 \text{ kgf}\cdot\text{cm}^{-2}$)을 일정하게 유지하면서 롤 회전속도를 변화시켰으며, 제조된 펠렛의 밀도를 그림 21에 나타내었다. 해당 조건에서 롤 회전속도에 의해 제조되는 펠렛의 밀도(또는 무게) 변화를 확인할 수 있었다. 즉 분말 주입속도(feeding speed)와 롤 회전속도(roll speed)를 일정하게 유지하면, 롤 포켓의 분말 주입량도 일정하지만, 롤 회전속도가 증가하게 되면 롤 포켓의 분말 주입량은 적어진다는 것이다. 이로 인해 제조된 펠렛의 밀도와 무게는 필연적으로 감소하는 경향을 보인다. 따라서 분말의 단위시간당 처리량을 증가시키고자 한다면 롤 회전속도를 증가시켜야 한다. 이때 분말의 감용화와 더불어 펠렛 고화체의 건전성을 확보하기 위해서는 반드시 분말 주입속도를 고려해야 한다.

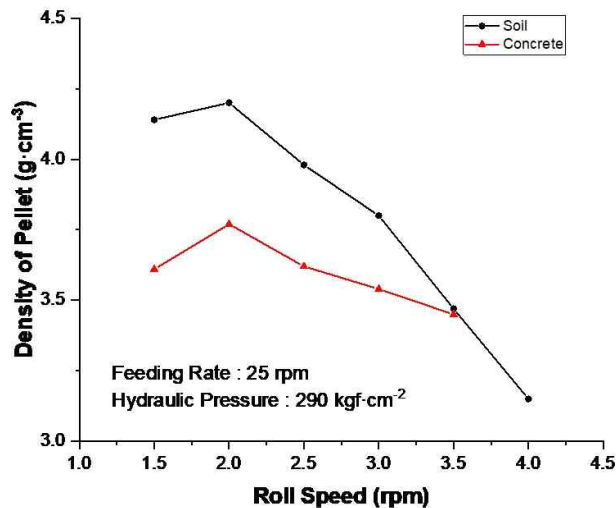


그림 21. 롤 회전속도(roll speed)에 따른 펠렛의 밀도 변화 - 토양, 콘크리트 [Unit : $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$]

그림 21에서 보이듯이 상기조건(Hydraulic Pressure : $290 \text{ kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$, feeding rate : 25 rpm)에서 롤 회전속도(roll speed)가 2.0 rpm 일 경우, 각 펠렛의 밀도는 토양(a) $4.21 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$, 콘크리트(b) $3.78 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 이다. 즉, 펠렛의 밀도 및 무게를 유지할 수 있는 운전조건은 성형압축력(hydraulic pressure)과 분말 주입속도(feeding rate)를 증가하는 방법이다. 해당 조건으로 성형장치를 가동한다고 가정했을 때, 롤 회전속도의 변화에 따른 단위 시간당 처리량(펠렛 성형량)을 그림 22의 (a)와 같이 예측할 수가 있다.

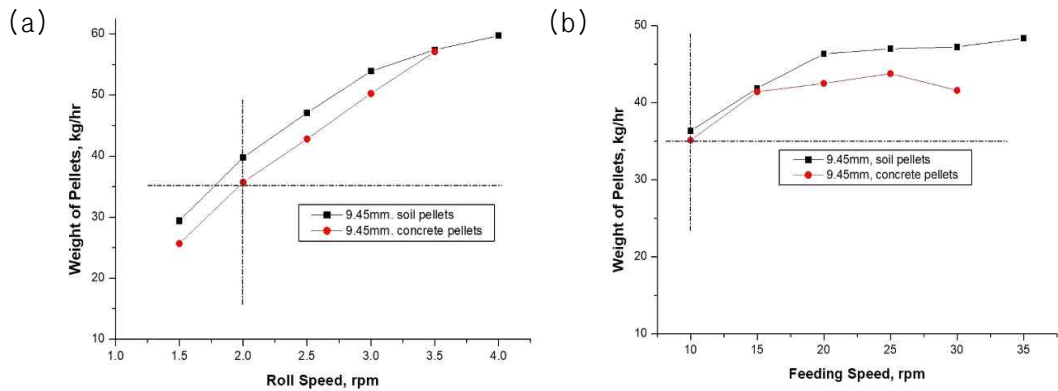


그림 22. 롤 컴팩터의 운전변수에 따른 단위 시간당 생산된 펠렛의 성형량
 - (a) roll Speed, (b) feeding Rate [Unit : kg/hr]

(4) Roll compactor - Feeding Rate

분말의 주입속도는 롤의 회전속도와 매우 밀접하며, 앞에서 살펴보았듯이 롤의 회전수에 최적화 되어야만 한다. 그리고 분말의 주입속도로 인해 롤 포켓 내로 분말 주입량이 과잉으로 공급되는 경우, 맞물려 서로 반대 방향으로 회전하는 롤의 특성상 기어의 맞물림에 부정적인 영향을 미칠 수 있다. 이는 두 롤 사이의 틈인 백래쉬(Backlash)로 인해 펠렛의 위상차이(Phase different)가 발생하게 되며, 애초 설계된 펠렛 모양으로 온전하게 성형되지 못한다. 그러므로 백래쉬(Backlash)

에 의한 두 롤의 기어 수정 및 원점 조절을 위한 장치의 유지보수를 배제하기 위
 해서는 롤 포켓 내의 분말 주입량이 시료별로 최적화된 상태에서 펠렛화가 수행되
 어야 한다. 따라서 고밀도 고강도의 펠렛을 제조하기 위해서는 분말의 주입속도
 조절에 유의할 필요가 있다. 이어서, 성형압축력과 롤 회전속도를 일정하게 유지
 시킨 상태에서 분말의 주입속도를 변화시켜 펠렛을 제조하였으며, 분말 주입속도
 에 따른 펠렛의 밀도 변화를 그림 23에 나타내었다. 롤 포켓에 주입되는 분말의
 양은 롤 회전속도가 일정하기 때문에 분말 주입속도에 따라 달라지며, 분말 주입
 속도가 빨라질수록 펠렛의 밀도와 무게는 증가하였다. 그러나 일정량 이상으로 분
 말 주입량이 과잉으로 공급되는 경우, 롤을 회전시키는 모터 토크(Torque)의 한계
 로 인해 롤 회전의 정지 현상 또는 펠렛 형태에 위상 차이가 발생하기도 하였다.

그림 23에서 보이듯이 상기조건(hydraulic pressure : $290 \text{ kgf}\cdot\text{cm}^{-2}$, roll speed
 : 2.0 rpm)에서 분말 주입속도가 25 rpm 일 경우, 각 펠렛의 밀도는 토양(a) $3.98 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$,
 콘크리트(b) $3.60 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 이다. 즉, 펠렛의 밀도 및 무게를 유지할 수 있는
 운전조건은 성형압축력(hydraulic pressure)과 롤 회전속도(roll speed)를 증가하
 는 방법이다. 해당 조건으로 롤 컴팩터를 가동시킨다면, 분말의 주입속도에 따른
 단위 시간당 처리되는 펠렛 성형량은 그림 22의 (b)와 같이 예측할 수가 있다.

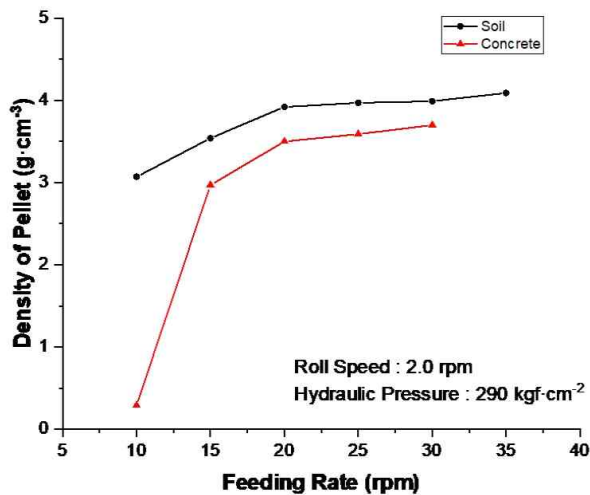


그림 23. 분말 주입속도(feeding rate)에 따른 펠렛의
 밀도 변화 - 토양, 콘크리트 [Unit : $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$]

나. 모의 시료의 펠릿화 실험 평가

롤 컴팩터를 이용해 분말 입자를 펠릿으로 압축 성형하였으며, 제조된 펠릿을 그림 24에 나타내었다. 사전 실험을 통해 도출한 장치의 최적 운전기준은 성형압축력(hydraulic pressure)은 $290 \text{ kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$, 롤 회전속도(Roll speed) 2.5 rpm, 분말 주입속도(feeding rate)는 25 rpm이었다. 상기 운전조건으로 제조된 펠릿의 강도는 $78.5 \sim 287.6 \text{ kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$ 이었으며, 표 18에 나타내었다.

(a) The sample of powder by type simulated waste



(b) The sample of pellets



토양

콘크리트

농축폐액

그림 24. 펠릿(Pellet) 제조 전과 후의 모습 - (a) 모의 시료별 분말, (b) 모의 시료별 성형 압축된 펠릿

그림 24에서 보듯이 롤 컴팩션 방식을 이용해 고밀도의 강성 펠릿으로 제조할 수 있음을 확인하였다. 이는 한국의 중·저준위방사성폐기물 인수조건에서 요구하는 경질 고화체에 대한 500 psig ($35.15 \text{ kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$) 기준을 만족하고 있다. 이들 펠릿은

어떠한 고화매질로 고화하여도 그 고화체는 처분조건을 만족한다는 의미로 해석할 수도 있다. 또한 포켓 내로 주입된 분말의 양이 많다는 의미로서 이를 압축하는 압력이 $290 \text{ kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$ 로도 충분하다는 의미로 해석된다. 제조가 완료된 시료들을 운전조건별 시료별로 각각 샘플링하여, 그림 25 에 정리해 나타내었다.

표 18. 고밀도 강성 펠렛의 압축강도 측정 결과

Components of Pellets	Device operating conditions ¹⁾			Sample of pellets	
	R.S.	F.R.	H.P.	Compressive strength	
	(rpm)	(rpm)	($\text{kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$)	(MPa)	(psi)
Soil		20		11.4	1,653
	2.5	25	290	10.8	1,566
		30		5.2	754
	2			19.7	2,857
	2.5	25	290	13.1	1,899
	3			8.5	1,232
Concrete		20		15.3	2,219
	2.5	25	290	12.0	1,740
		30		7.7	1,116
	2			28.2	4,090
	2.5	25	290	17.0	2,465
	3			24.4	3,538
Concentrated waste				19.70	2,857
	2.0	20	290	13.10	1,899
				8.50	1,232

1) Roll pocket size: 9.45 mm, Hydraulic pressure: $290 \text{ kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$

(a) **Change of the roll speed (R.S.: 1.5 ~ 4.0 rpm)**

Fixed process parameters – Hydraulic pressure: $290 \text{ kg} \cdot \text{cm}^{-2}$, Feeding rate: 25 rpm
 Fixed geometric parameters – Pellet size: 9.45 mm

Powder material: Soil



R.S.: 1.5 rpm R.S.: 2.0 rpm R.S.: 2.5 rpm R.S.: 3.0 rpm R.S.: 3.5 rpm RS: 4.0 rpm

Powder material: Concrete



R.S.: 1.5 rpm R.S.: 2.0 rpm R.S.: 2.5 rpm R.S.: 3.0 rpm R.S.: 3.5 rpm RS: 4.0 rpm

(b) **Change of the feeding rate (F.R.: 10 ~ 35 rpm)**

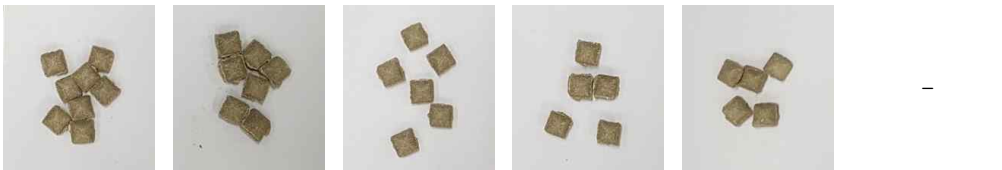
Fixed process parameters – Hydraulic pressure: $290 \text{ kg} \cdot \text{cm}^{-2}$, Roll speed: 2.5 rpm
 Fixed geometric parameters – Pellet size: 9.45 mm

Powder material: Soil



F.R.: 10 rpm F.R.: 15 rpm F.R.: 20 rpm F.R.: 25 rpm F.R.: 30 rpm F.S.: 35 rpm

Powder material: Concrete



F.R.: 10 rpm F.R.: 15 rpm F.R.: 20 rpm F.R.: 25 rpm F.R.: 30 rpm F.S.: 35 rpm

그림 25. 펠렛화 조건 실험을 통해 제조된 펠렛의 실제 모습 - (a) Change in roll speed (R.S.: 1.5 ~ 4.0 rpm), (b) Change in feeding rate (F.R.: 10 ~ 35 rpm)

제 4장 . 방사성폐기물 고화체의 특성평가

제 1절 . 폴리머 고화체의 주요 특성 및 시편 제작

1. 폴리머 고화체의 특성

국내의 방사성폐기물 인수기준(Waste Acceptance Criteria, WAC)은 크게 방사학적인 특성과 방사성폐기물의 건전성 확보 측면을 고려하고 있다. 방사학적인 특성 측면으로는 처분장에 처분되는 방사성폐기물의 핵종별 총 방사능량을 제한하는 것을 예로 들 수 있다. 이는 처분장의 저장 능력이 정해져 있으므로, 방사성폐기물을 목표를 달성하기 위함이다. 그리고 처분되는 방사성폐기물의 구조적 건전성 확보와 방사성핵종의 누출 정로를 제한하는 것은 방사성폐기물의 건전성 확보 측면이라고 볼 수 있다. 또한, 건전성 확보 측면으로는 방사성폐기물의 구조적 건전성 확보와 방사성핵종의 누출 정도를 제한하고 있다. 따라서 자체처분이 가능한 방사성폐기물과 극·저준위 방사성폐기물을 제외한 방사성폐기물을 대상으로 고형화(Solidification) 및 안정화(Stabilization)하여 처분이 적합한 형태로 전환 시킬 수 있다. 이때 고형화/안정화는 고화매질(solidification matrix)과 방사성폐기물을 혼합시켜, 모놀리스(monolith) 형의 단일 고형물질로 전환 시키는 공정이다.

따라서 본 연구에서는 대상 폐기물로 선정된 원전해체과정에서 발생하는 미세 입자들인 오염 토양(Soil), 폐콘크리트 파쇄물(Spent concrete), 그리고 원전운영 시 발생하는 농축폐액의 건조 분말(Decon. sludge) 등은 고형화/안정화 시켜 처분되어야 한다. 이들 대상 폐기물들은 처분부적합 방사성폐기물로서 분산 특성을 갖는 분산성/입자성의 폐기물이기 때문에 안정화는 더욱 필수적이다. 이러한 고형화/안정화에 사용되는 고화 매질로는 시멘트(Cement), 아스팔트(Asphalt), 폴리머(Polymer), 세라믹(Ceramic), 그리고 유리(Glass) 등이 있다.

상기 언급한 고화 매질을 사용한 고형화 방법은 분말 상태의 방사성폐기물을 고화 매질과 혼합(Mixing)해 교반하고, 이들 혼합물을 양생 또는 경화 과정을 거쳐 단일 고형물질(고화체)로 만드는 것이 일반적이라 할 수 있다. 이때 분말 방사성

폐기물 입자 하나하나를 고화매질로 둘러싸야(encapsulation) 하므로, 최종 폐기물 고화체의 부피는 초기 방사성폐기물의 부피보다 필연적으로 커지게 된다. 특히 제조된 고화체는 일정 이상의 기계적 강도(구조적 건전성)를 유지하면서, 고화체 내에 함유된 방사성핵종이 누출되는 것을 방지하기 위해, 방사성폐기물의 함유율(incorporation ratio)에 제한을 받게 된다. 이는 처분장의 조기 포화 문제와 처분비용이 증가하는 문제를 야기시킬 수 있다. 이러한 문제점을 인식하고 분말 상태의 방사성폐기물을 고형화/안정화할 목적으로 여러가지 이점들이 있는 폴리머 고화 기술을 국내 원자력발전소에서도 적용한 바 있다(표 19 참조).

표 19. Advantages of Polymer-Solidification Process

<ul style="list-style-type: none"> ▶ 규제승인(Regulatory Approval) <ul style="list-style-type: none"> • Class A, B, C 방사성폐기물의 안정화를 위해 미국의 NRC에서 승인한 Topicals를 사용한 유일한 고형화 방법 • 미국의 모든 상업용 저준위 방사성폐기물 처분장에서 허용됨 ▶ 용적효율(Volume Efficient) <ul style="list-style-type: none"> • VERI™는 부피 증가가 전혀 없음 • VES는 폐기물과 고화매질의 비율이 2:1 ▶ 개선된 고화체(Improved Waste Form) <ul style="list-style-type: none"> • 압축강도는 시멘트의 5~10배 • 침출 지수는 시멘트의 10,000배 까지 ▶ 제어 및 일관성(Controlled and Consistent) <ul style="list-style-type: none"> • PCP가 고화매질의 배합을 결정 • Reliable translation bench to full-scale 	<ul style="list-style-type: none"> ▶ 내화학적성(Chemically Tolerant) <ul style="list-style-type: none"> • 광범위한 폐기물 pH 범위에 대한 내성 • 화산염(sulfates), 질산염(nitrates), 암모니아(ammonia)의 영향을 받지 않음 ▶ 사용자 친화적(User-Friendly) <ul style="list-style-type: none"> • 휴대용, 스키드(skid) 및 트레일러 장착형 • 유지 보수가 적은 작업 ▶ ALARA <ul style="list-style-type: none"> • 노출을 최소화하기 위한 차폐 • 원격 조작(Remote operation) 및 제어 • 비디오 모니터링 ▶ 경제적(Economical) <ul style="list-style-type: none"> • 낮은 자본과 장비 비용 • Burial Overpack 또는 HIC가 필요하지 않음 • 폐기물 양의 감소로 인해 컨테이너, 운송, 및 매장(burial) 비용이 절감됨.
--	---

한편, 미국과 프랑스는 방사성폐기물의 고화에 폴리머 고화 매질을 이용하는 대표적인 국가이다. 프랑스에서는 습윤 상태의 폐수지 및 소각재를 고화하는 경우 에폭시 수지(Epoxy resin)를, 건조 상태의 폐수지 및 금속류의 잡기재를 고화하는 경우 스타이렌(Styrene) 계열을 사용하고 있다. 반면에 미국의 DTS (Diversified Technologies Service) 사를 비롯한 회사들은 비닐 에스테르(Ester) 계열, 비닐 스타이렌(Styrene) 계열 등 비교적 저렴한 폴리머를 사용하고 있다.

따라서 분산 특성을 갖는 처분부적합 방사성폐기물을 고형화/안정화시킬 방법으로 폴리머 고화를 적용하였다. 즉, 분말상의 방사성폐기물의 처분을 위하여, 폐기물의 감용화 방법과 더불어 기존 고화방식에 대한 문제점을 개선하고자 한다.

2. 펠렛의 폴리머 고화 실험

본 연구에서는 고화 매질로 에폭시 폴리머를 선택해 사용하였으며, 이러한 이유는 다음과 같이 크게 두 가지로 설명할 수 있다. 첫째, 대부분 폴리머는 물과의 친화력이 적은 소수성의 성질이며, 폐기물과의 점착성(Adhesion)을 증대시키는 높은 점착성의 성질을 가지며, 이는 폐기물 고화체의 건전성과 내침출성을 향상 시킬 수 있기 때문이다. 둘째, 폴리머는 고화 전까지 액상의 형태를 띄고 있기 때문에, 단순 주입으로도 펠렛을 고화하기가 매우 쉽다.

상기와 같은 이유로 분말의 펠렛화를 통해 제조된 펠렛을 용기에 충전 시키고, 소수성 및 고 점착성의 폴리머를 사용해 고화하고자 하였다. 이때 펠렛은 일정 크기(Size)와 모양(Shape)을 갖도록 압축 성형되며, 이들 펠렛을 폴리머로 고화하기 위해서는 채널링(Channeling) 현상을 방지해야 한다. 이러한 이유는 펠렛들 사이의 공극으로 폴리머의 침투(Penetration)와 펠렛들 사이 공극에 존재하는 공기의 배출이 수월해야 하기 때문이다. 이와 같은 과정의 효율을 높이기 위해 진공펌프를 사용해 공기 및 기포의 배출을 증가시키기도 한다. 또한 폴리머는 주로 상온 경화형 수지인 열경화성수지(Thermosetting resin)가 사용된다. 언급한

열경화성수지는 폴리머 주제(主劑)로서 경화시 경화 반응을 조절 및 촉진 시키기 위해 경화제(Hardener)가 함께 사용된다. 따라서 펠렛의 폴리머 고화를 위하여, 최적의 폴리머 구성물(주제/경화제/희석제)과 혼합비율을 선정하고자 각 폴리머 구성물에 대한 각각의 실험을 수행하였다.

한편, 실험에 사용되는 폴리머로 KUKDO CHEMICAL CO., LTD.에서 구매한 YD-128(주제)/G-1034(경화제)/LGE(희석제), 실링(Sealing) 계열의 에폭시 KRS(주제)/KH(경화제)를 사용하였다. 그리고 DONGYANG CHEMICAL CO., LTD.에서 구매한 THC 계열 에폭시와 해외에서 구매한 YD-134(주제)/KMH(경화제)를 사용하였다.

가. 폴리머 구성물의 점도 측정

본 실험에서는 폴리머로 주제는 YD-128 외 3종(YD-134, THC-4001L, THC-4001M), 경화제는 G-1034 외 3종(KMH-153XB80, THC-4001L, THC-4001M)을 사용하였다. 한편 반응성 희석제(Reactive diluent)인 LGE는 C12 ~ C14의 지방족 알코올류(Aliphatic alcohols)로 혼합 구성된 글리시딜에테르(Glycidyl ether)이다. 이는 점도가 50 ~ 20 cps으로 매우 낮기 때문에 주제와 경화제의 혼합을 용이하게 하며, 펠렛들 사이 공극에 폴리머를 주입 시 유동성을 부여한다.

그러므로 주제와 경화제의 혼합 및 배합(Equivalent ratio)에 있어서 폴리머 구성물의 점도(Viscosity)는 매우 중요하다. 따라서 폴리머 구성물(주제와 경화제)간의 혼합을 원활하게 해주는 첨가물로서, 점성을 낮추기 위해 희석제가 사용되었다. 이어서 Brookfield사의 Viscometer(모델, DV-E)를 사용해 폴리머 구성물의 점도를 측정하였다. 이때 속도(rpm)에 대한 cps 한계치가 있으며, 이에 따라 제조된 Spindle을 알맞게 교체하여 사용하였다. 아래 표 20, 그림 26, 27에는 LGE(희석제)의 비율 변화에 따른 폴리머 혼합물의 점도를 조건별로 정리하였다.

그림 26, 27에서 보듯이 주제의 점도가 높지만, 희석제의 주입량이 늘어남에 따라 주제(YD-128 외 3종)와 경화제(G-1034 외 3종)의 점도가 낮아짐을 알 수가 있다. 이렇듯 고화 매질의 점도가 낮으면 유동성을 높아 작업률이 오르지만,

폴리머 고화체의 강도가 약해지기 때문에 고화 매질의 점도는 매우 중요한 요소라고 할 수 있다. 따라서 폴리머 구성물의 점도 선정은 폴리머 혼합비율 및 펠렛 고화 실험을 통해 발생하는 변수들을 고려해 결정되어야 한다고 판단하였다.

표 20. LGE 비율 변화에 따른 폴리머 YD-128의 점도 - 25 RPM 기준 [Unit : cps]

	LGE 첨가량 (%)					
	0	5	10	15	20	25
Viscosity (cp) YD-128 + LGE	19,050	5,850	2,700	1,080	810	450

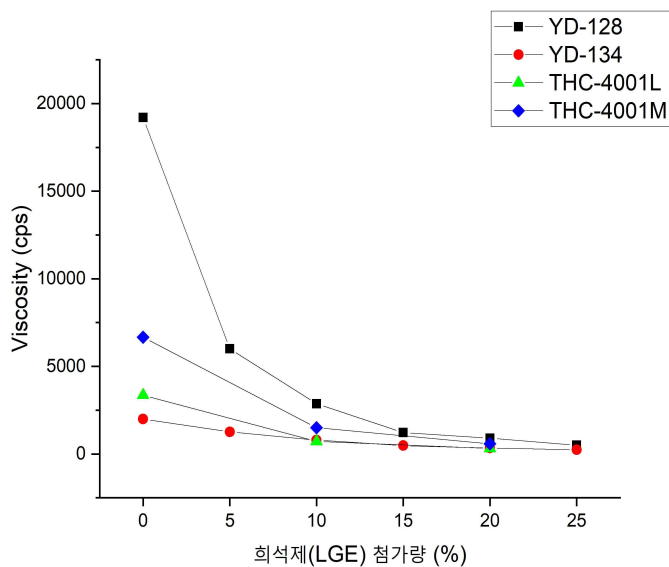


그림 26. LGE 비율 변화에 따른 폴리머 주제의 점도 - 30 RPM 기준 [Unit : cps]

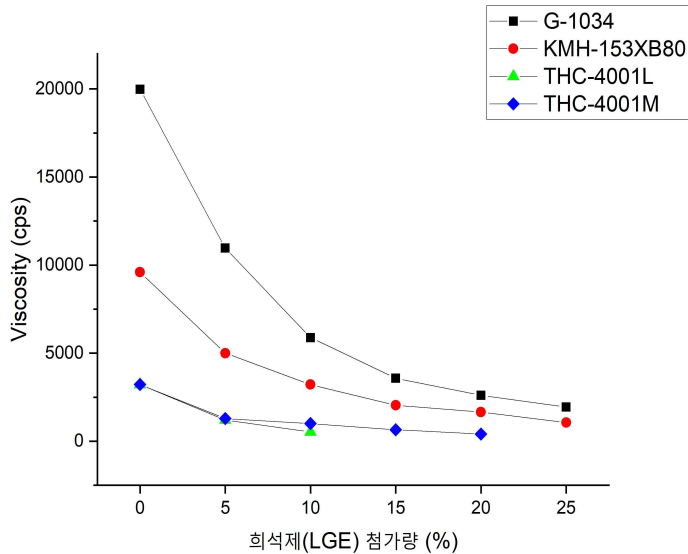


그림 27. LGE 비율 변화에 따른 폴리머 경화제의 점도 - 30 RPM 기준 [Unit : cps]

나. 고화 매질과 혼합비율의 선정

펠렛의 폴리머 고화에 앞서 사용될 고화 매질의 선정은 다음과 같은 사항을 고려하였다. 첫째 현재 국내외적으로 상용이 되어있는 폴리머로서 에폭시(Epoxy), 불포화에스테르(Unsaturated polyester), 디비닐벤젠(Divinylbenzene) 계열 등처럼 구매시 사용자의 접근성이 편해야 한다. 둘째, 고화 공정에서 대량으로 사용되는 폴리머의 점도를 쉽게 조절할 수 있어야 한다. 셋째, 고 접착성의 고화 매질이 고화시 펠렛을 잘 고정할 수 있어야 하며, 이후 고화된 고화체는 폐기물 인수기준에 부합할 수 있도록 구조적 건전성 및 내 침출성 등이 확보되어야 한다.

상기와 같은 사항을 고려해 각종 폴리머 구성물의 혼합비율을 변화시켜 예비 시편을 제조하였으며, 이를 표 21에 나타내었다. 표 21에서 보듯이 실험에서 사용된 폴리머로 K사의 YD-128(주제)/G-1034(경화제)/LGE(희석제), 실링(Sealing)

계열의 에폭시 KRS(주제)/KH(경화제)를, 그리고 D사의 THC 계열 에폭시와 해외에서 구매한 YD-134(주제)/KMH(경화제)를 사용하였다.

표 21. 고화매질 선정을 위한 각종 폴리머 구성물의 혼합비율 [Unit : w.t.%]

구분	폴리머 구성물의 혼합비율		
	시료번호	주제 / 경화제	경화제 주입량 (phr)
001	THC-4001L / THC-4001L	90 : 70	56 / 44
002	THC-4001M / THC-4001M	90 : 70	56 / 44
003	KSR-177 / G-1034	65 : 35	65 / 35
004	KSR-177 / KH-700	100 : 100	50 / 50
005	KSR-276M70 / G-1034	45 : 55	45 / 55
006	KSR-276M70 / KH-700	30 : 70	30 / 70
007	YD-128 / G-1034	65 : 35	65 / 35
008	THC-4001L / THC-4001L	100 : 50	67 / 33
009	THC-4001M / THC-4001M	100 : 50	67 / 33
010	YD-134X80 / KMH-153XB80	40 : 60	40 / 60

이때, 각종 에폭시 폴리머의 혼합비율은 각 구입처의 권고사항을 고려해 선정되었다. 예를 들어 K사에서는 YD-128 : G-1034 = 65 : 35 phr 로 혼합하기를 권고하고 있다. 이처럼 각종 폴리머의 혼합비율은 경화제 주입량(Parts per Hundred parts of Resins, phr)으로 표기되고 있으며, 이는 에폭시 수지 100에 경화제를 얼마 첨가하는지를 의미한다. 즉, 에폭시 당량(Epoxy Equivalent Weight, EEW)은 에폭시를 1 당량 함유하는 에폭시 수지의 중량을 말하며, 아민의 활성수소당량(Active Hydrogen Equivalent Weight, AHEW)은 아민의 분자량 분의 아민의 활성수소의 수이다. 따라서 최적 경화제 주입량(phr)은 아래 식(2)와 같이 나타낼 수 있다.

$$\text{최적 경화제 주입량 (phr)} = \frac{AHEW}{EW} * 100 \quad (2)$$

이어서 만들어진 예비 시편을 대상으로 경화시간과 고화 상태를 확인하였으며, 압축강도 및 간이 침수시험 등 사전 실험을 수행해 이들 결과를 분석하였다. 사전 실험결과 대부분의 고화체는 사전 실험을 통과하지 못하고, 고화체 외부로 폐기물 분말을 분출하거나 고화체에 균열이 생기는 것을 확인했다. 이어서 사전 실험에서 1차적으로 통과한 시편의 모습은 그림 28에 나타내었으며, 해당 시편의 시표번호는 007번 ~ 010번이었다.



그림 28. 사전 특성평가에 사용된 고화체 시편 (007, 008, 009, 010)

그림 28에서 보듯이 1차적으로 통과한 시편으로부터, 압축강도, 열순환, 침수 시험, 그리고 시험 후 압축강도 측정을 통해 추가적인 사전 실험을 수행하였다. 추가 실험결과 008번 시편의 경우 침수 후 고화체의 강도가 일반 압축강도와 비교하였을 때 반 이상으로 현저하게 떨어졌으며, 이는 고화 매질이 내수성에 취약한 고화 매질인 것으로 판단되었다. 010번 시편의 경우 압축강도 및 시험 후 압축강도에서 다른 고화 매질의 2 ~ 3 배 낮게 측정되었다. 한편 사전 실험을 통과한 고화 매질 중 불포화에스테르 계열의 에폭시는 고화 과정에서 약 150 °C의 높은 발열 온도를 가졌다. 이때 고화시 고화체로부터 발생하는 높은 고열은 고화체 내외부로부터의 균열과 팽윤 현상을 일으켰다. 결과적으로 사전 실험을 통해 007번(YD-128 : G-1034 = 65 : 35 phr)과 009번(THC-4001M : THC-4001M = 67 : 33 phr)의 고화 매질 및 혼합비율이 가장 적합하다는 결과를 얻었다. 따라서 해당 고화 매질 및 혼합비율을 중 하나를 선택해 본 연구에서 사용하도록 하였다. 또한, 권고된 최적 경화제 주입량(phr)을 참고해 혼합비율을 결정하되, 실제 펠렛 고화 시 LGE의 첨가량도 함께 고려해야 할 것이라고 판단되었다.

다. 선정된 고화 매질과 폴리머 고화체의 압축강도 측정

앞서 선정된 고화 매질에 대한 LGE 혼합비율을 선정하기 위해 폴리머 고화체를 LGE 혼합비율과 경화 온도별 제조하여, 고화체의 압축강도를 측정하였다. 이때, 폴리머 고화체 시편은 LGE 혼합비율을 0 ~ 25 %로 조절하여 제조하였으며, LGE 혼합비율이 0 %는 A, 5 %는 B, 10 %는 C, 15 %는 D, 20 %는 E, 25 %는 F로 표기하였다. 또한, 폴리머 고화체 제조시 주변 온도를 달리해 경화하였으며, 상온에서의 경화는 T1, 50 °C에서의 경화는 T2, 60 °C에서의 경화는 T3, 75 °C에서의 경화는 T4로 표기하였다. 이어서 LGE 혼합비율과 경화 온도별 제조된 폴리머 고화체의 압축강도를 측정 전/후의 모습은 그림 29, 30에 나타내었다.

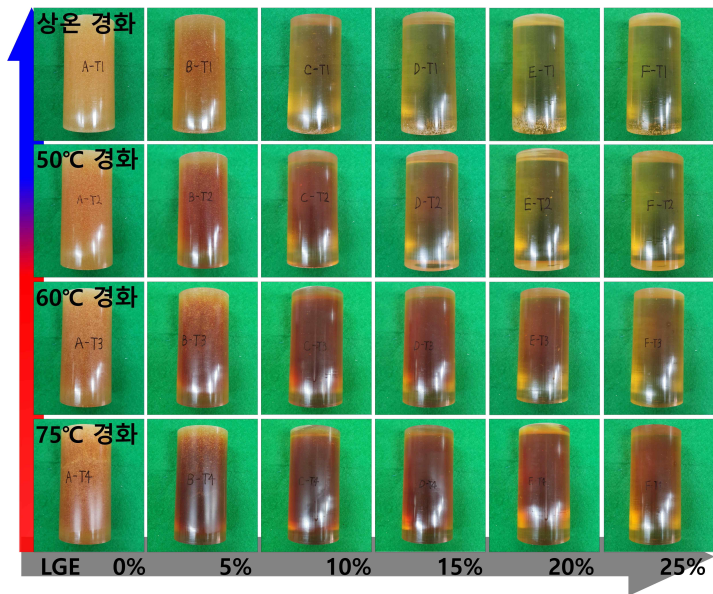


그림 29. LGE 혼합비율 및 경화 온도별 제조된 폴리머 고화체의 모습

그림 29에서 보듯이 LGE 첨가량이 늘어날수록 폴리머 고화체의 외관상 고화 매질 자체가 투명해지는 것을 볼 수 있다. 그리고 폴리머 고화체 경화 시 주변 온도가 높아질수록 고화체의 외관상 고화 매질의 색상이 짙어지는 것을 볼 수

있다. 이러한 외관상의 특징은 그림 30 과 같이, 폴리머 고화체의 압축강도 측정 후의 모습에서도 찾아볼 수 있다.

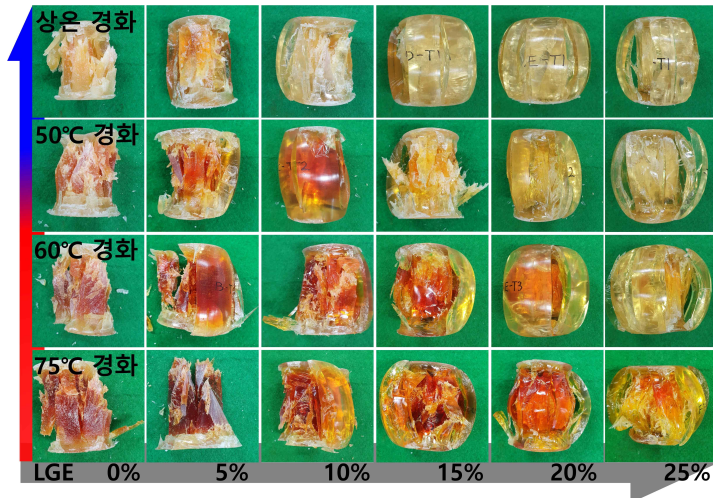


그림 30. LGE 혼합비율 및 경화 온도별 제조된 폴리머 고화체의 압축강도 측정 후의 모습

그림 30 에서 보듯이 폴리머 고화체의 파괴 형태는 전형적인 경질유형(rigid type)의 특성을 보여주고 있다. 그리고 폴리머 구성물 중 LGE 첨가량이 늘어날수록 파단 형태는 탄성 변형(elastic deformation)의 특성 또한 보여주고 있다. 이러한 탄성 변형은 하중이 가해져 변형된 재료가, 하중을 제거하면 변형 전의 상태로 되돌아가는 성질을 말한다. 즉 보통 탄성 한도 내의 재료 변형을 뜻하며, LGE 첨가량이 25 %일 경우에서 보듯이 찢어진 형태의 파괴 형태도 볼 수 있었다.

한편, 이러한 경향은 압축강도 측정 결과에서 볼 수 있으며, 그림 31 ~ 34 에 나타내었다. 그림 31 ~ 34 에서 보듯이 상온 경화 시 LGE 혼합비율별 제조된 고화체의 압축강도가 가장 변화의 폭이 컸다. 이러한 압축강도의 변화 폭은 경화 온도가 75 °C 까지 높아질수록 LGE 혼합비율별 제조된 고화체의 압축강도의 변화 폭은 완만해 졌다. 하지만 경화 온도 및 LGE 혼합비율을 달리하더라도, 폴리머 고화체의 압축강도는 최소 85 MPa 이상으로 유지함을 보였다.

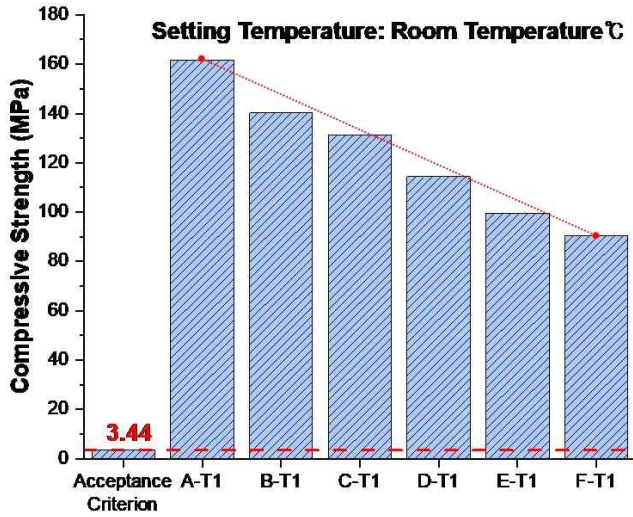


그림 31. LGE 혼합비율별 제조된 폴리머 고화체의 압축강도 측정 결과 - 상온 경화 [Unit : MPa]

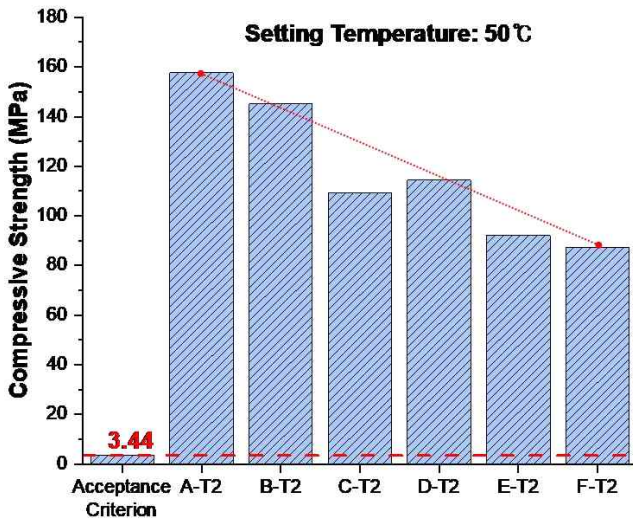


그림 32. LGE 혼합비율별 제조된 폴리머 고화체의 압축강도 측정 결과 - 50 °C 경화 [Unit : MPa]

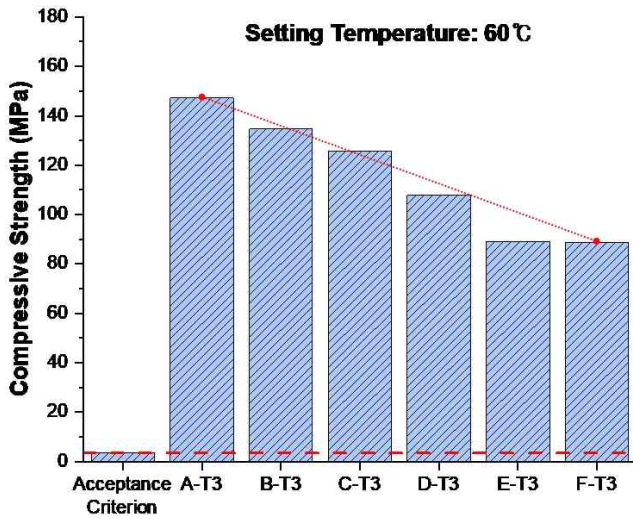


그림 33. LGE 혼합비율별 제조된 폴리머 고화체의 압축강도 측정 결과 - 60 °C 경화 [Unit : MPa]

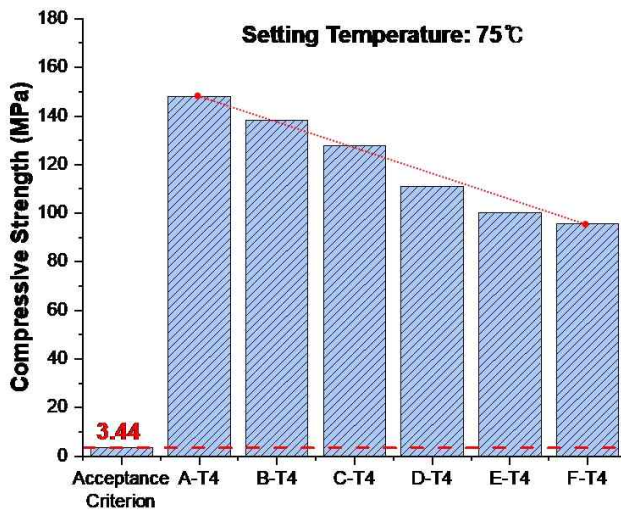


그림 34. LGE 혼합비율별 제조된 폴리머 고화체의 압축강도 측정 결과 - 75 °C 경화 [Unit : MPa]

라. 성형 펠렛의 폴리머 고화 실험

앞서 언급한 바와 같이 일정 크기와 형태를 가지는 펠렛의 경우는 고화 매질과 혼합 및 교반 등의 방법으로 고화할 수 없다. 따라서 펠렛을 고화 용기 내에 충전시키고, 펠렛들 사이 공극에 액상의 고화 매질을 주입하는 방안을 고안하였다. 따라서 이와 같은 방법으로 펠렛의 폴리머 고화 과정과 개념도를 설계하였다. 그리고 경화 주변 온도변화에 따른 시편의 발열 온도 측정, 경화 온도 변화에 따른 시편의 압축강도 측정 실험을 수행하였다.

(1) 성형 펠렛의 폴리머 고화 과정 및 개념

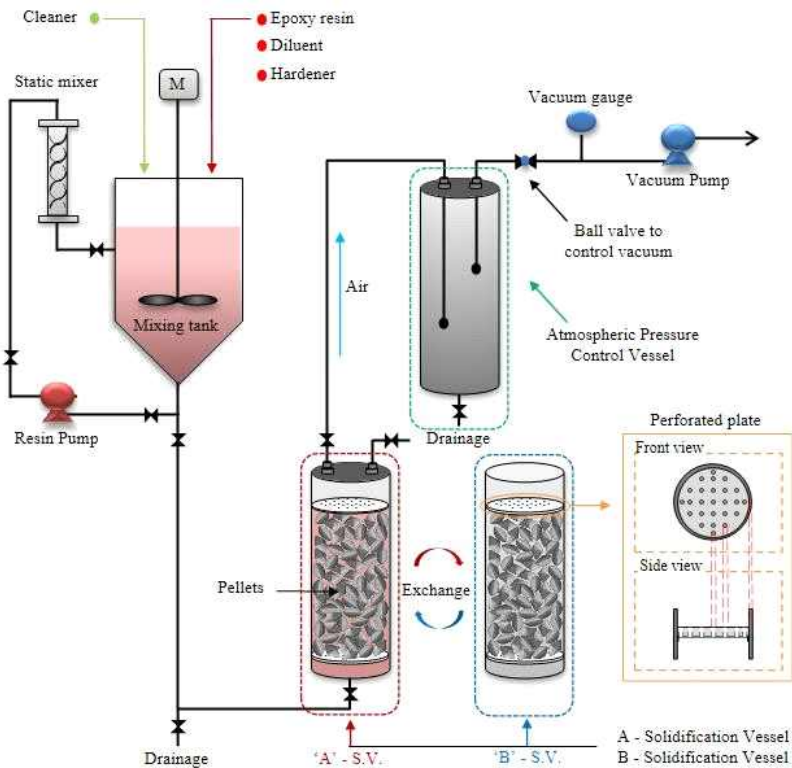


그림 35. 성형 펠렛의 폴리머 고화 과정과 장치의 개념도

상기와 같은 이유로 본 실험에서의 성형 펠렛의 폴리머 고화 과정과 장치의 개념도를 그림 35 에 나타내었다. 그림 35 에서 보듯이 고형화 용기(Solidification Vessel, S.V.)에 펠렛을 충전시키고, 액상의 폴리머 혼합물을 용기 하부로 주입한다. 이후 폴리머가 주입이 완료되면 하부 주입구를 차단시키고, 용기 상부에 연결된 진공펌프(Vacuum Pump)를 이용해 고형화 용기 내부를 진공상태로 유지시킨다. 따라서 펠렛들 사이 공극에 존재하는 공기(기포)를 진공을 이용해 고화체 상부로 배출시키는 방법으로 성형 펠렛의 폴리머 고화가 수행하였다.

(2) 경화 온도 변화에 따른 펠렛 폴리머 고화체의 압축강도 측정

펠렛과 폴리머 고화체의 구조적 건전성을 사전에 판단하기 위해 고화 시 각각 다른 온도(상온, 50 ℃, 60 ℃)에서 경화된 고화체의 압축강도를 측정하였다. 그림 36 에서 보듯이 폴리머 고화체의 파괴 형태는 전형적인 경질유형(rigid type)의 특성을 보여주고 있다. 그리고 그림 37 에서 보듯이 압축강도는 처분장 인수조건 $34 \text{ kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$ ($3.44 \text{ MPa} = 500 \text{ psi}$)을 훨씬 상회하는 모습을 보여준다. 이때, 경화 온도와는 무관하게 최소 $187 \text{ kg}_f \cdot \text{cm}^{-2}$ 이상의 강도를 유지하며, 경화 온도가 증가할수록 고화체의 압축강도는 높아지는 것을 확인하였다. 따라서 고화체 제조 시 주변 온도를 높일수록, 펠렛의 강도가 높을수록 고화체의 구조적 건전성에 긍정적인 영향을 미치는 것으로 판단되었다.



그림 36. 경화 온도 변화에 따른 펠렛 폴리머 고화체의 압축강도 측정 후의 모습

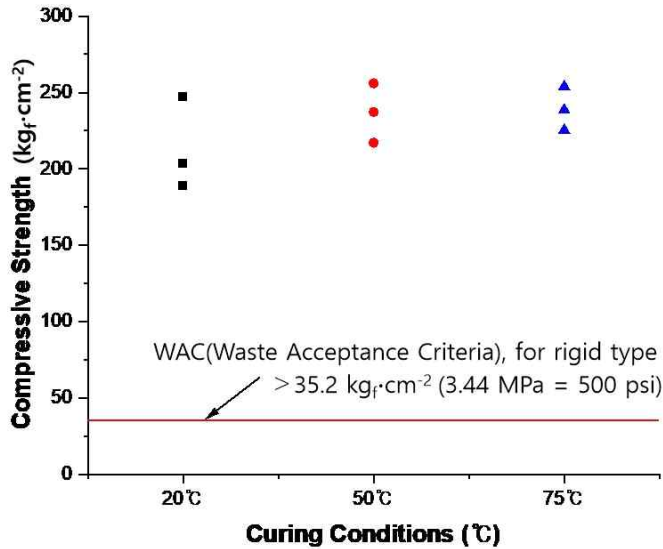


그림 37. 경화 온도 변화에 따른 펠렛 폴리머 고화체의 압축강도 측정 결과 [Unit : kg_f·cm⁻²]

(3) 펠렛의 폴리머 고화체의 경화 시 발열 온도 측정

펠렛과 고화 매질의 고형화/안정화를 위해서 다음과 같은 실험을 수행하였다. 먼저 펠렛 폴리머 고화체 제조 시 각각 다른 온도(상온, 50 °C, 60 °C)에서 경화시켜, 고화체의 내부의 온도변화를 확인하였다. 이때 부피가 1.2 L 인 시료를 사용하였으며, 경화는 상온 또는 50 °C, 60 °C의 온도로 일정하게 유지 시킬 수 있는 항온조 내에서 수행하였다. 또한, 고화체의 상, 중, 하 부분에 3 개의 열전대(Thermo couple)를 삽입하고 고화 시간에 따른 내부 온도를 Data Logger 에 기록하였다. 이어서 해당 기록을 가시적으로 볼 수 있도록 그림 38 ~ 40 과 같이 정리해 나타내었다.

그림 38 ~ 40 에서 보듯이 고화시 주변 온도가 상온일 경우 경화 시작 후 189 분에 최고 온도인 89 °C에 도달하였다. 그리고 주변 온도가 50 °C인 경우 경화 시작 후 98 분에 최고 온도인 89 °C에, 주변 온도가 60 °C인 경우 경화 시작 후 45 분에 최고 온도인 102 °C에 도달하였다. 또한, 고화체 내부 온도가 하강하는 경향을 보았을 때, 주변

온도가 60 °C인 경우 경화 시작 후 100 분 부근에서 폴리머의 중합반응이 완료되었다고 판단되었다. 이 결과들을 비교하여 보았을 때, 최고 온도에 도달하는 시간은 상온 경화와 비교해 50 °C인 경우 약 1/2로, 60 °C인 경우 약 1/4로 단축되었음을 확인하였다. 이는 고화시 주변 온도가 상승할수록 경화시간이 단축되며, 작업시간 측면에서 주변 온도가 60 °C인 경우가 유리하다고 판단되었다.

한편, 경화 시 고화체는 내부의 온도가 주변 온도로 자연스럽게 떨어지도록 하여야 한다. 급격한 온도변화는 고화체의 건전성에 악영향을 미치며, 고화체 내외부의 균열 가능성을 높이기 때문이다. 이렇게 경화 완료된 시편은 용기(몰드) 제거 후 냄새와 육안상으로 판단하였을 때 완전히 경화된 것으로 확인되었다. 따라서 상기 언급된 사전 실험들의 결과를 종합해, 펠렛과 폴리머 고화는 고화체의 주변 온도가 60 °C로 유지되는 항온조 내에서 수행하기로 결정되었다.

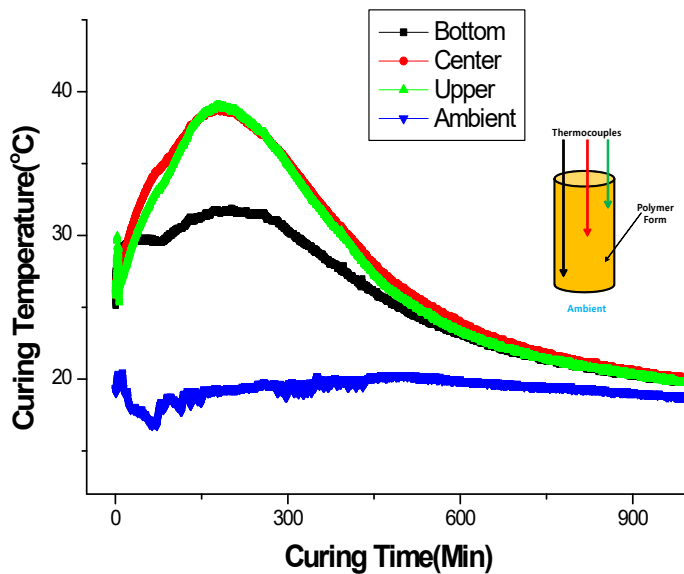


그림 38. 펠렛의 폴리머 고화체의 경화 시 발열온도 측정 - 상온 경화 [Unit : °C]

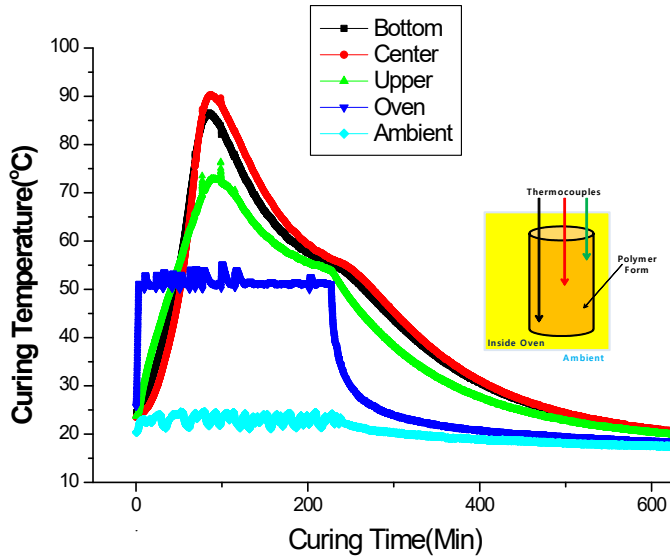


그림 39. 펠릿의 폴리머 고화체의 경화 시 발열온도 측정 - 50 °C 경화 [Unit : °C]

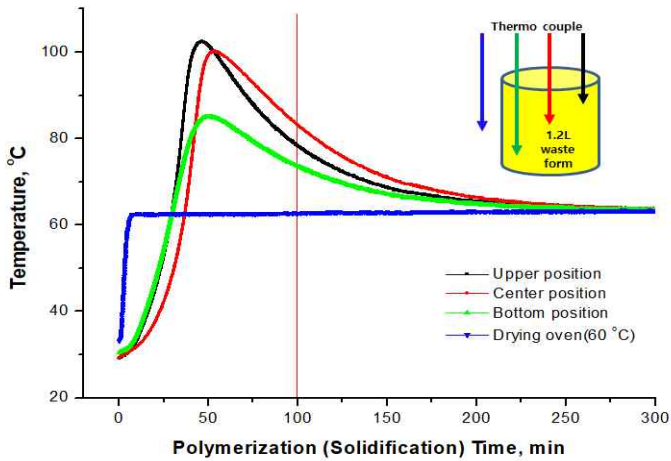


그림 40. 펠릿의 폴리머 고화체의 경화 시 발열온도 측정 - 60 °C 경화 [Unit : °C]

3. 폴리머 고화 시편 제조

본 연구에서는 고밀도 펠릿을 제조하고, 이를 함입해서 고화체를 제조하기 때문에 기존에 사용된 고화체 제조방법과는 매우 다르다. 그러므로 펠릿을 함입한 폴리머 고화체 제조방법 및 개념도를 그림 41에 나타내었다. 그림 41에서 보듯이 펠릿을 용기에 충전 시키고, 이후 남은 공간에 에폭시 수지인 폴리머를 주입해 고화였다. 이때 고화체 시편 내의 펠릿 주입량은 평균 60 w.t.%로 조절하였다. 그리고 사용된 폴리머에 대하여 epoxy resin(YD-128), Hardener(G-1034)의 배합비율이 65:35이며, 희석제(LGE)의 주입량이 늘어날수록 펠릿의 함입이 용이하지만 강도는 약해지기 때문에 LGE의 주입량을 혼합물 전체의 10%로 선정하였다. 또한 고화체는 60 °C로 유지되는 항온조 내에서 경화시켰다. 이어서 경화가 완료된 고화체로부터 표면가공 및 초기 제원측정을 하였으며, 이후 폐기물 인수기준에서 제시하고 있는 특성평가 시험을 수행하였다.

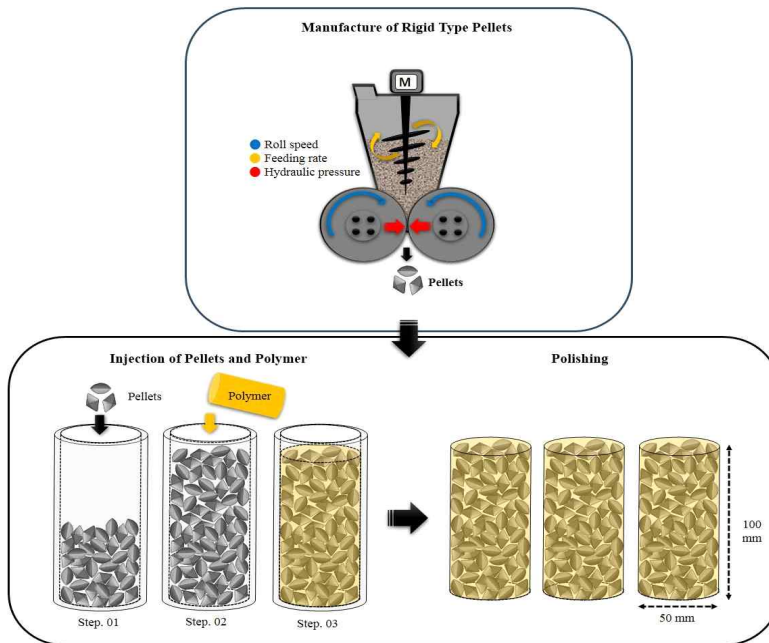


그림 41. 펠릿이 함입된 폴리머 고화체 제조방법 및 개념도

본 연구에서는 건조된 분말을 압축한 펠릿을 사용하고, 펠릿을 용기 내에 충전 후 남은 공간에 대해서 에폭시 수지인 폴리머를 주입해 고화하여 시편을 만들었다. 따라서 유리수 측정은 본 실험에서 제외하였다. 따라서 표 22에 명시된 실험을 수행하여 폐기물 인수기준에 대한 적합성을 평가하였다. 그리고 펠릿이 함유된 폴리머 고화체의 경화주변 온도를 60 °C로 설정하여 경화시켰으며, 해당 고화체는 그림 42에 나타났다.

표 22. Acceptable Criteria of polymer-solidified body

Test Items		Acceptable Criteria
1.	General	
2.	Compressive strength test after immersion test	≥ 3.44 MPa = 500 psig
3.	strength test after Thermal cycling test	
4.	after Irradiation test	
5.	Leaching test	Co, Cs, Sr, ≥ LX : 6
6.	Free standing test	< 0.5 (vol.%)



그림 42. 제조된 펠릿 폴리머 고화체 시험 시편
 - (a) 특성평가용, (b) 침출시험용

제 2절. 폴리머 고화체의 특성평가

1. 압축강도 시험

고화체의 구조적 건전성을 평가하는 시험 항목 중 압축강도 시험은, 처분장 내에서 폐기물 고화체가 받는 하중을 고려한 것이다. 한편 10 CFR 61.56(b) (1)에는 “구조적으로 안정한 고화체는 일반적으로 압축 장비 또는 지면 다짐 장비의 무게를 고려한 처분장의 예상 조건하에서 물리적인 크기와 형태를 유지해야 한다.” 라고 명시되어 있다[51]. 이와 같은 이유로 고화체에 대한 온도 내구성, 내 방사선, 미생물 영향, 침수 전후의 구조적 건전성을 평가해야 한다. 따라서, 본 실험에서는 고화체의 일반 시편과 열 순환, 방사선조사, 침수와 같은 시험이 완료된 폴리머 고화체를 대상으로 압축강도를 수행하였다.

압축강도 시험은 KS-F 2405(2010) 콘크리트 압축강도 시험 방법에 명시되어 있는 절차에 따라 진행하며, 해당 장비를 보유하고 있는 한국화학융합시험연구원(Korea Testing & Research Institute., KTR)에 의뢰하여 측정하였다. 해당 장비는 D사에서 제조한 Tension and compression testing machine으로, 1000 kN 급의 용량에 0.1 kN의 해상력(resolving power)을 가지고 있다.

상기 언급된 압축강도 시험 방법은 가압판의 중심과 시편의 중심을 일치시키고, 이후 상부 가압판을 일정한 재하 속도로 이동시켜 고화체 시편에 하중을 가하는 방법이다. 이때 시편의 상하부 접촉 표면은 압축기 상하부의 가압판에 밀착이 되어 있으며, 하중을 가하되 매초 0.6 ± 0.4 MPa (= 6.12 ± 4.08 kg_f/cm²)로 일정하게 유지되었다. 그리고 시편의 물리적 변형 이후 파괴 및 큰 균열이 발생할 때까지 하중을 유지하고, 해당 시점으로부터 최대하중을 계산한다.

즉, 압축강도 값은 최대하중(N)을 시편의 단면적으로 나누어 계산할 수 있으며, 시험 시편의 지름(mm) d 는 두 방향의 시편 지름(mm) $d_1 + d_2$ 를 둘로 나누어 계산하고, 압축강도(MPa) f 는 최대하중(N) P 를 $\pi(\frac{d}{2})^2$ 으로 나누어 산출하였다.

2. 열 순환 시험

고체의 열화 정도는 고화 매질, 미세성분의 구조 및 형태, 구성물들의 결합력 등 다양한 인자들에게 영향을 받는다. 특히 중·저준위 방사성폐기물 고화체의 수송 및 임시저장 시 발생할 수 있는 대기의 열적 변화와 같은 상황을 고려하여, 고화체 시편을 단기간 열 순환 주기에 노출 시키고 이에 대한 열 적응력 및 건전성을 평가해야 한다. 한편 ASTM B553, Thermal cycling test for evaluation of electroplated plastics 에 고화체의 열 순환 시험 방법이 명시되어 있다[52]. 그리고 미국 원자력규제위원회의 BTP 에서는 ASTM B553 와 달리 시멘트 고화체에 대하여, 상한 온도(+ 60 ℃)와 하한 온도(- 40 ℃)를 변경하여 열 순환 시험을 수행하도록 권고하였다[53].

열 순환 시험은 Standard test method for thermal cycling of electroplated plastics - ASTM: American Society for Testing and Materials 에 기술된 열 순환 시험 방법에 따라 진행하며, 해당 장비를 보유하고 있는 한국화학융합시험원(KTR)에 의뢰하여 수행하였다. 해당 장비는 순환식 가열/냉각 챔버(Chamber)로 구성되어 있어, 고화체 시편이 동결 용해 사이클(freezing and thawing Cycle)을 받도록 충분한 열량공급과 보온 조절이 가능하다. 또한, 온도의 상승 및 하강률은 10 ℃/hr 이며, - 40 ℃에서 + 60 ℃ 까지 변경이 가능하다. 그리고 해당 온도 사이에서 24 시간 동안 유지할 수 있는 반복성과 재현성을 갖는 사이클을 발생할 수 있다.

상기 언급된 열 순환 시험 방법은 다음과 같다. 시험 시작 후, 시편은 1 시간 동안 22 ± 3 ℃의 온도를 유지하며, 이후 60 ℃, 30 ℃ 에서도 시편을 각각 1 시간 동안 유지한다. 이때 온도를 하강 및 상승시킬 때 10 ℃/hr 의 속도로 변화시킨다. 위의 과정을 1 사이클(Cycle)로 총 30 회를 반복하며, 30 사이클 반복 완료 후에도 22 ± 3 ℃의 온도에서 1 시간 동안 유지 시킨 후 열 순환 시험을 종료한다. 열 순환 시험이 종료되면 해당 시편들은 2 일(48 시간) 동안 실온에서 건조 시키며, 완료된 펠렛 폴리머 고화체 시편은 육안검사(외형적 변화)를 진행하고, 문제가 없는 시편으로부터 제원 및 압축강도를 측정하였다.

3. 방사선조사 시험

고화체의 방사선조사 시험은 이온교환수지를 비롯한 유기물을 포함하고 있거나, 피폭선량이 10^7 Gy 이상으로 예상되는 고화체에 대해 방사선조사 시험을 수행할 필요가 있다. 이는 약 10 Ci/ft^3 농도의 ^{137}Cs 또는 ^{90}Sr 이 함유된 고화체가 300년 동안 처분장에 저장된다고 가정할 때, 누적 피폭선량이 $10^6 \text{ Gy}(10^8 \text{ rad})$ 정도의 방사선 피폭량에 노출될 수 있기 때문이다. 상기와 같이 미국 원자력규제위원회에서는 방사선조사 시험을 통해 고화체의 손상 정도를 파악해야 한다고 제시하고 있다. 한편, 미국의 원자력규제위원회의 BTP 에 의하면 방사성 피폭량에 따른 고화체의 영향은 고화물질 및 매질에 따라 다르며, 수지 고화체는 10^6 Gy , 시멘트 고화체는 10^7 Gy 이상의 누적 피폭선량에도 영향을 받지 않는다고 언급했다. 그리고 미국의 경우 단위 시간당 조사선량율에 대한 정의가 없으며, $10^6 \text{ Gy}(10^8 \text{ rad})$ 의 누적 조사량만 제시하고 있다고 언급했다[53]. 방사선조사 시험은 미국 원자력규제위원회의 Technical Position on Waste Form, (Rev. 1)에서 명시되어 있는 절차에 따라 진행하며[54], 방사선조사시설을 보유하고 있는 한국원자력연구원(Korea Atomic Energy Research institute, KAERI)의 첨단방사선연구소(ARTI)에 의뢰하여 측정하였다. 폴리머 고화체가 받게 되는 총 누적선량은 $10^6 \text{ Gy}(10^8 \text{ rad})$ 가 되도록 수행하였으며(그림 43 참조), 완료된 펠렛 폴리머 고화체 시편은 육안검사(외형적 변화)를 진행하고, 문제가 없는 시편으로부터 제원 및 압축강도를 측정하였다.



그림 43. 제조된 폴리머 고화체의 방사선조사 시험 모습

4. 침수 시험

미국 원자력규제위원회에서 제시한 바와 같이, ANS 16.1의 침출 시험 방법과 연계해 침수 시험을 수행할 수 있다고 제시하고 있다[55]. 그리고 침수 및 침출 시험에서 사용되는 물은 탈 이온수, 합성 해수를 사용할 수 있다고 명시하고 있다. 이어서 침수 시험 후 고화체 시편은 균열, 팽윤, 부스러짐(깨짐 및 파쇄) 유무를 육안으로 관찰하고, 결함이 없는 시편에 대하여 압축강도를 측정하였다. 이때 시험 후 고화체 시편의 압축강도는 3.45 MPa 이상이어야 하며, 침수 시험 전 압축강도와 비교하였을 때 해당 강도의 75 % 이상으로 유지하여야 한다고 제시하고 있다.

한편 시험 시편의 크기는 압축강도 시험법에 명시하고 있는 시편 조건을 참고하였다. 이는 시험 후 압축강도를 측정하기 위함이며, 시편의 크기는 직경(Diameter)/높이(Height) = 1/2 (직경 = 50 mm)으로 선정되었다. 침수 시험에 사용된 침수용액은 초순수 제조 장치(Millipore Direct-Q)를 통해 전도도가 1.06 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 으로 생산되는 초순수를 사용하였다. 또한, 침수 용기 및 고화체 지지대를 직접 설계 및 제작하여 사용하였으며, 그림 44에 나타내었다.

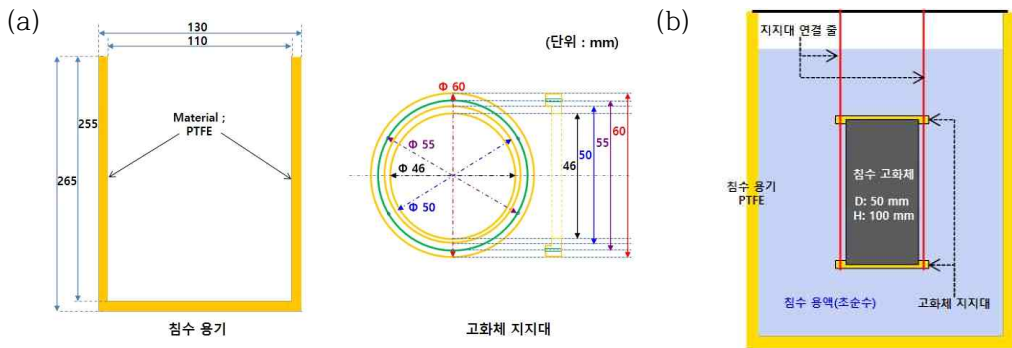


그림 44. 설계된 PTFE 침수 용기의 구성 - (a)침수 용기 및 고화체 지지대의 제원, (b)침수 용기의 개념도

그림 44에서 보듯이 설계된 침수 용기의 규격은 ANS 16.1의 침출 시험법에서 제시한 것처럼 시료의 침출수 부피/표면적이 10 cm가 되도록 하였다. 그리고 침수 용기의

재질은 PTFE(Poly Tetra Fluoro Ethylene, 테프론)이며, 이는 폴리머 고화체로부터 누출된 염들이 침수 용기의 표면에 달라붙지 않도록 하기 위함이다. 특히 고화체 시편은 침수용액 안에서 그 주변으로부터 일정한 거리를 유지해야 하며, 동일한 양의 두께로 침수용액에 잠길 수 있도록 고화체 시편을 지지시켜야 한다. 이때 지지대와 고화체가 접촉되며, 해당 면적은 고화체 표면으로부터 2 % 이하로 유지되어야 한다. 이러한 이유로 침수 용기와 고화체 지지대를 특별히 설계/제작하였다. 이어서 시험 시편을 그림 44의 (b)에서 보듯이 지지대 사이에 끼워 넣은 고화체 시편을 거치대 중앙에 위치한다. 이어서 시편을 침지 시킨 후 침수액의 증발을 막고자 용기의 상부를 비닐로 밀폐시킨다. 즉, 90 일 동안 고화체 시편을 침수액에 침수시키며, 침수 시험이 완료된 시편은 상온에서 48 시간 건조 시켰다. 이후 육안검사(외형적 변화)를 진행하고, 문제가 없는 시편으로부터 제원과 압축강도를 측정하였다(그림 45 참조).

침수 시험 중 고화체 장착 및 거치는 다음과 같은 순서로 진행하였다.

- 고화체 하부 지지대와 상부 지지대를 사이에 고화체를 끼워 넣는다.
- 상부 및 하부 지지대를 줄(낙식줄)로 서로 연결한다.
- 지지대 상부와 연결된 줄(낙식줄)을 거치대(쇠 막대기)의 중앙에 위치한다.
- 고화체가 매달린 거치대를 잡고, 침수 용기에 서서히 침수 시킨다.

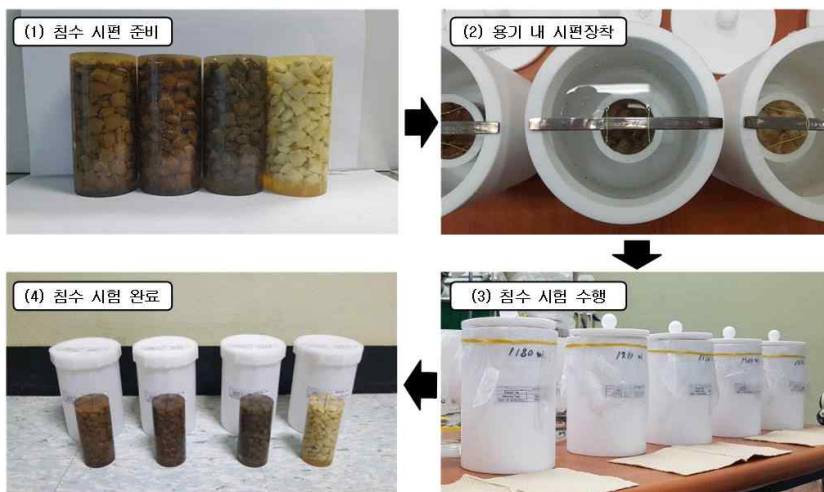


그림 45. 침수용 시편 모습과 침수 시험 수행과정

5. 침출 시험

침출 시험은 ANS 16.1 에 의해 90 일 동안 수행되며, 고화체로 부터 핵종의 누출이 얼마나 이루어졌는지를 평가하는 시험 항목이다. 고화체의 상/하부 면을 침수용액에 노출하는 방식으로 90 일 동안 침출 시간에 따른 고화체 침출 기구(mechanism)의 변화를 알아보는 것이다. 특히 단기침출거동은 고화체를 대상으로 측정된 초기 침출률을 부분 확산을 통해 설명할 수 있지만, 장기침출거동은 침식, 용해, 부식 등을 통해 설명할 수 있다. 이때 장기침출거동에 대한 IAEA 의 HEPSE method 의 침출 시험 방법은 ANS 16.1 과는 다르며, 고화체의 상부 면을 약 240 일 이상 침수용액에 노출하는 방식을 사용한다. 이때 침출액의 샘플링은 총 21 회 수행하고, 분석 결과를 토대로 유효확산계수를 계산한다고 명시되어 있다.

한편 시험 시편의 크기는 시편의 크기는 직경(Diameter)/높이(Height) = 1 (직경 = 50 mm)으로 선정되었다. 침수 시험과 동일하게 침수용액은 초순수 제조장치를 통해 전도도가 1.06 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 으로 생산되는 초순수를 사용하였다. 특히 침수 시험과 마찬가지로 침출 시험의 고화체 시편도 침수용액 안에서 그 주변으로부터 일정한 거리를 유지해야 한다. 이때 고화체 지지대와 고화체가 접촉되며, 해당 면적은 고화체 표면으로부터 2 % 이하로 유지되어야 한다. 따라서 침출 용기 및 고화체 지지대 또한 직접 설계 및 제작하였으며, 그림 46 에 나타내었다.

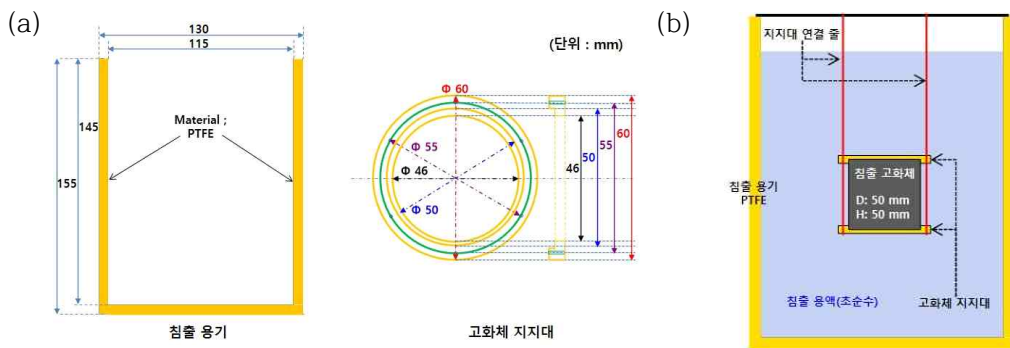


그림 46. 설계된 PTFE 침출 용기의 구성 - (a) 침출 용기 및 고화체 지지대의 제원, (b) 침출 용기의 개념도

그림 46의 (b)에서 보듯이 시험 시편을 지지대 사이에 끼워 넣은 고화체 시편을 거치대 중앙에 위치한다. 그리고 침출 용기 상부를 비닐로 밀폐시켜, 침출액의 증발 및 이물질에 대한 노출 위험성을 방지한다. 이어서 침출 용기의 덮개를 덮은 후, 고화체 시편을 90일간 침출제 내에서 침수시키며 실험을 수행한다(그림 47 참조).

침출 시험 중 고화체 장착 및 거치는 다음과 같은 순서로 진행하였다.

- 고화체 하부 지지대와 상부 지지대를 사이에 고화체를 고정시킨다.
- 상/하부 지지대를 낚싯줄(플라스틱 줄)로 연결한다.
- 지지대 상부와 연결된 줄을 거치대(쇠 막대기)의 중앙에 위치한다.
- 고화체가 매달린 거치대를 잡고, 침출 용기에 서서히 침수시킨다.

ANS 16.1에서 명시된 시험법은 침출 시험 시작 후 0.1, 0.3, 1, 2, 3, 4, 5, 19, 47, 그리고 90일 간격으로 침출액을 교체 및 샘플링을 수행한다. 이어서 교체된 침출액의 pH와 전기전도도(Electrical Conductivity)를 측정하였다. 일반적으로 방사성폐기물의 침출 특성 연구에서 Tracer는 ^{137}Cs , ^{60}Co 그리고 ^{90}Sr 등을 사용한다[23]. 시험을 위한 고화체 시편에는 화학종(Cs, Co, Sr)을 첨가해 성형한 펠렛을 함유해 제조하였다. 최종적으로 교체된 침출액으로부터 화학종 함유량을 분석하였다.

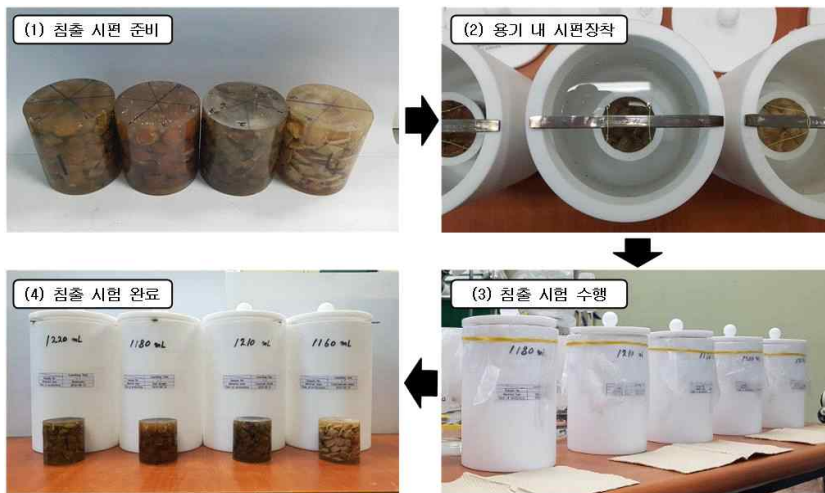


그림 47. 침출용 시편의 모습과 침출 시험 수행과정

제 3절 . 폴리머 고화체의 특성평가 결과 및 분석

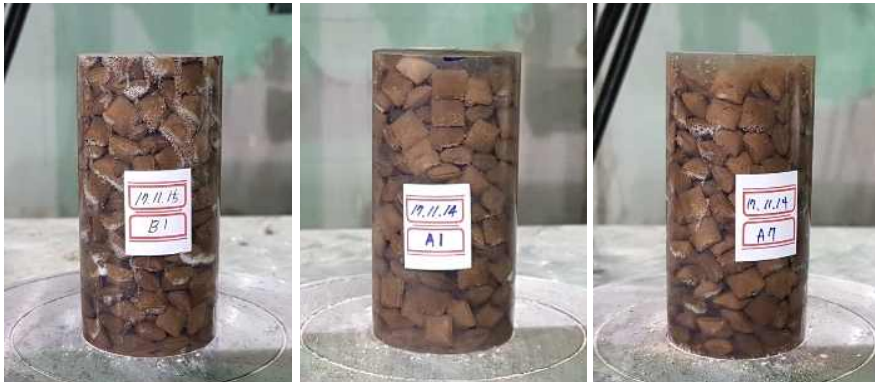
1. 압축강도 특성

압축강도는 폐기물 고화체의 구조적 안정성을 평가할 수 있는 기계적 특성 중 하나로 중요한 평가항목이다. 한국의 경우 한국공업규격(KS)에 따라 경질의 경우 KS-F-2405(2010) 압축강도 시험법이 명시되어 있다. 또한, 미국 원자력규제위원회의 Technical Position on Waste Form (Rev.1, 1991)에서는 폴리머 고화체의 경우 최소 60 psi 를 규정하고 있다. 시험용 시편은 단일 에폭시 혼합비를 사용하며, 함입되는 펠렛(폐기물 종류)을 달리하면서 시편을 제작하였다(그림 48 참조). 경화된 폐기물 고화체의 압축강도는 25.50 MPa(3,699 psi) ~ 28.20 MPa(4,090 psi) 였으며, 평균 압축강도는 26.85 MPa(3,894 psi) 이었다(그림 49 참조). 폐기물 고화체에 대한 압축강도 시험 결과, 시험을 위해 준비된 모든 시편은 우수한 구조적 무결성(structural integrity)을 보였다.



그림 48. Appearance of polymer solidified body(Solidified sample prepared before characterization test)

(a) Before the compressive strength test



(b) After the compressive strength test



Curing at room temp.

Curing at 50 °C

Curing at 70 °C

그림 49. Appearance of polymer solidified body(Compressive strength test)

2. 열 순환 특성

미국 원자력규제위원의 BTP 에서는 ASTM B553 와 달리 시멘트 고화체에 대하여, 상한 온도(60 °C)와 하한 온도(- 40 °C)를 변경하여 열 순환 시험을 수행하도록 권고하였다. 이를 근거로 하여 미국 원자력규제위원의 BTP 에서 제시한 온도 주기(열 순환 주기)를 그림 50 에 나타냈다. 따라서 폴리머 고화체의 열 안정성을

확인하기 위해 ASTM B553의 시험법에 따라 약 -40 °C에서 60 °C 온도 내에서 1 사이클(24 시간) 기준으로 총 30 회의 열순환 시험을 수행하였다.

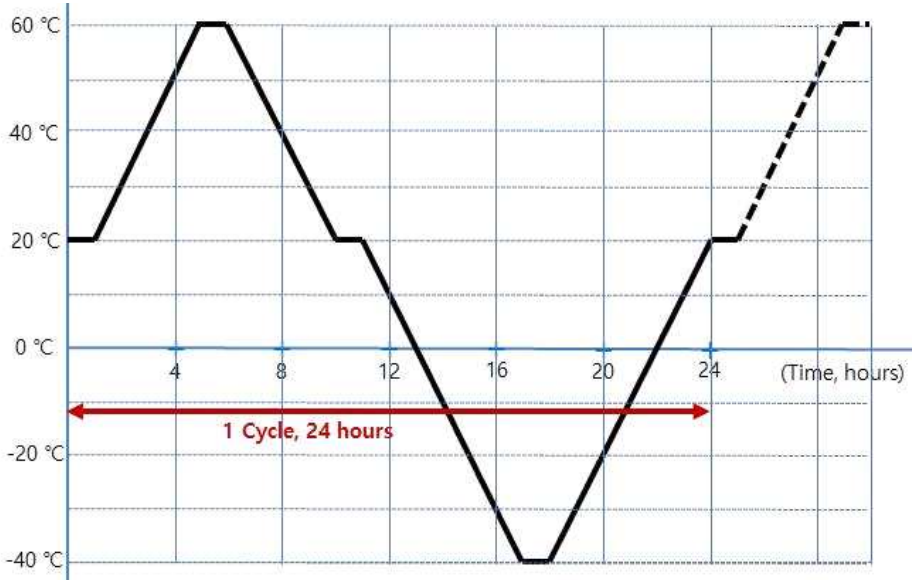


그림 50. Upper and lower temperature limit of thermal cycling test(1 cycle, 24 hours)

시험 후 육안 관찰시, 고화체의 외관에는 균열, 팽윤, 부스러짐과 같은 큰 외형적 변화가 없었다. 열 순환 시험 후, 폴리머 고화체의 압축강도를 측정하였다(그림 51 참조). 그 결과 평균 압축강도는 27.10 MPa(3,930 psi)으로 측정되었다. 또한, 시험 전후로 고화체의 재원을 비교하였을 때, 무게와 부피 변화율이 1% 미만에서 유지된 것으로 확인되었다. 따라서 폴리머 고화체는 열 순환 시험 후에도 여전히 구조적 무결성을 가지고 있다고 판단할 수 있었다.



그림 51. Appearance of polymer solidified body(Thermal cycling test)

3. 방사선조사 특성

미국 원자력규제위원회는 유기성분이 함유된 이온교환수지의 방사선조사에 중점을 두고 있으며, 무기 성분인 시멘트 및 붕산농축폐액에 대해서 조사시험을 강제하지 않기 때문이다. 그러나 본 연구에서는 폴리머 고화체의 특성평가 및 자료 확보를 위해 10^8 rads 까지 시험을 수행하였다. 따라서 방사선조사 시험은 약 9.40×10^4 Gy/hr 의 평균흡수선량률(Average Absorbed dose rate)로 약 106.5 시간 조사되어 총흡수선량률(Total absorbed dose)은 1.00×10^6 Gy 까지 수행되었다.

시험 후 육안 관찰 시, 폴리머 고화 매질에 대한 약간의 황변(Yellowing) 현상이 있을 뿐 고화체의 외관에는 균열, 팽윤, 부스러짐과 같은 큰 외형적 변화가 없었다. 이후 폴리머 고화체의 압축강도를 측정하였다. 그 결과 압축강도는 23.90 MPa(3,466 psi) ~ 37.60 MPa(5,53 psi) 였으며, 평균 압축강도는 30.67 MPa(4,448 psi) 이었다. 또한, 시험 전후로 고화체의 체적을 비교하였을 때, 무게와 부피 변화율이 1 % 미만에서 유지된 것으로 확인되었다. 따라서 폴리머 고화체는 방사선조사 시험 후에도 여전히 구조적 무결성을 가지고 있다고 판단할 수 있었다.

(a) After the irradiation test



Soil

Concrete

Concentrated waste

(b) The compressive strength test after the irradiation test



IR-1

IR-2

IR-3

그림 52. Appearance of polymer solidified body(Irradiation test)

4. 침수 특성

침수 시험은 미국의 원자력규제위원회에서 제시한 바와 같이, ANS 16.1의 침출 시험에 연계하여 시행하였다. 상기 시험법으로 폴리머 고화체의 내수성을 평가하기 위해 90일 동안 침수 시험을 수행하였다. 침수 시험에 사용된 물은 초순수를 침수용액으로 사용하였으며, 각 시편은 상온에서 물에 담가 주기적으로 검사했다. 그리고 침수 시험 후 시편의 균열, 팽윤, 부스러짐 등의 유무를 육안으로 관찰하고, ASTM C39에 따라 압축강도 시험을 수행하였다.

그 결과 90 일 동안 침수된 폐기물 고화체에서 외관상의 변화나 결함이 발견되지 않았다. 그리고 압축강도는 33.19 MPa(4,814 psi) ~ 42.89 MPa(6,221 psi) 였으며, 평균 압축강도는 39.09 MPa(5,670 psi) 이었다. 또한, 시험 전·후로 고화체의 재원을 비교하였을 때, 무게와 부피 변화율이 1 % 미만에서 유지된 것으로 확인되었다. 따라서 ANS 16.1의 침출 시험법에 의거, 침수 시험 후 폴리머 고화체의 압축강도는 3.45 MPa (500 psi) 이상으로 충족되었다. 또한, 침수 시험 전 일반 압축강도와 비교하였을 때 해당 강도의 75 % 이상은 유지함을 확인하였다.

(a) After immersion test in demineralized water for 90 day



Soil

Concrete

Concentrated waste

(b) The compressive strength test after immersion test



I-1

I-2

I-3

그림 53. Appearance of polymer solidified body(Immersion test)

5. 침출 특성

침출 시험은 ANS 16.1 에서 기술된 시험법에 의해 90 일간 방사성 고화체로부터 핵종의 누출 정도를 평가하였다. 침수 시험과 마찬가지로 침출수(leachant)는 초순수 제조 장치(Millipore Direct-Q)로 제조하여 사용되었다. 이 초순수의 전기전도도는 ANS 16.1 에서 제시된 $5 \mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$ 보다 더 낮은 값인 $1.06 \mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$ 을 갖고 있다. 시험을 시작한 후 0.1, 0.3, 1, 2, 3, 4, 5, 19, 47, 그리고 90 일 간격으로 침출수 교체마다 침출액의 pH 및 전기전도도(Electrical Conductivity)를 측정하였다. 또한, ICP-MS 와 ICP-AES 를 이용하여 침출액 내의 Co, Cs, Sr 의 농도를 분석하였다[56]. 샘플링 된 침출수의 분석 결과를 토대로, 유효 확산성, 침출성 지수, 침출 된 누적 분율 및 침출 속도를 계산하였다.

이러한 수학적 표현은 다음과 같다;

$$F = \frac{\sum a_n}{A_0} \quad (3)$$

$$R = \left[\frac{a_n/A_0}{(\Delta t)_n} \right] \quad (4)$$

$$D = \pi \left[\frac{a_n/A_0}{(\Delta t)_n} \right]^2 \left[\frac{V}{S} \right]^2 T \quad (5)$$

$$L_i = \frac{1}{n} \sum_1^n [\log(1/D_1)]_n \quad (6)$$

여기서, F 는 침출된 누적 분율, a_n 는 침출 간격 n 차 동안 시편에서 방출된 핵종의 양(g), A_0 는 침출 시험 초기에 시편에 있는 핵종의 초기함유량(g). R 은 침출 속도(fraction $\cdot s^{-1}$), t 는 n 번째 침출 구간의 시간. D 는 유효확산계수($cm^2 \cdot s^{-1}$), V 는 시편의 부피(cm^3)와 S 는 시편의 표면적(cm^2), \bar{t} 는 n 번째 침출 구간의 평균시간을 의미하는 침출 시간. L_i 는 핵종 i 의 침출 지수를 나타낸 것이다[57].

침출 시험에 사용된 폴리머 고화체 시편은 화학종으로 사용되는 Co, Cs, Sr를 첨가하여 제조된 펠릿을 함유한 고화체 시편이다. 이는 침출 시험 시 각각 교체된 침출액으로부터 화학종을 분석하기 위함이다. 표 23에 정리된 폴리머 고화체의 제원을 통해 시편별 핵종의 농도를 정밀하게 계산하였다.

표 23. Specification of polymer-solidified body for leaching test

No.	Incorporated material type	Size of specimen		Weight of specimen			Volume of specimen (cm^3)
		Diameter (mm)	Height (mm)	Pellet (g)	Epoxy (g)	Total (g)	
L-1	Pellet (Soil)	50.08	50.09	90.9	62.9	153.9	98.6
L-2	Pellet (Concrete)	50.67	50.63	95.6	59.4	154.9	102.0
L-3	Pellet (Concentrated waste)	49.74	49.71	90.6	60.3	150.9	96.6

계산된 펠릿 폴리머 고화체의 화학종(Co, Cs, Sr) 농도는 표 24에 나타내었다. L-3 시편의 경우, 침출용 폴리머 고화체 제조에 사용된 농축폐액 펠릿의 질량은 90.58 g이다. 이때 펠릿 성형시 농축폐액(Concentrated waste) 분말의 비율은 97 w.t.%으로, 첨가된 화학종 Co, Cs, Sr 각각 1 w.t.%씩 총 3 w.t.%가 사용되었다. 이를 기준으로 농축폐액 펠릿이 함유된 L-3 시편의 화학종 초기 농도는 Co, Cs 그리고 Sr에 대해 각각 479.00, 694.22 그리고 388.85 mg으로 계산된다. 상기와 같이 침출용 시편별, 화학종별로 각각 계산하였다.

표 24. Initial concentration of chemical species [Unit : mg]

No.	Types of pellets	Tracer (mg)		
		Co	Cs	Sr
L-1	Soil	480.91	696.98	390.40
L-2	Concrete	505.28	728.35	410.19
L-3	Concentrated waste	479.00	694.22	388.85

(a) Before the leaching test



(b) After the leaching test

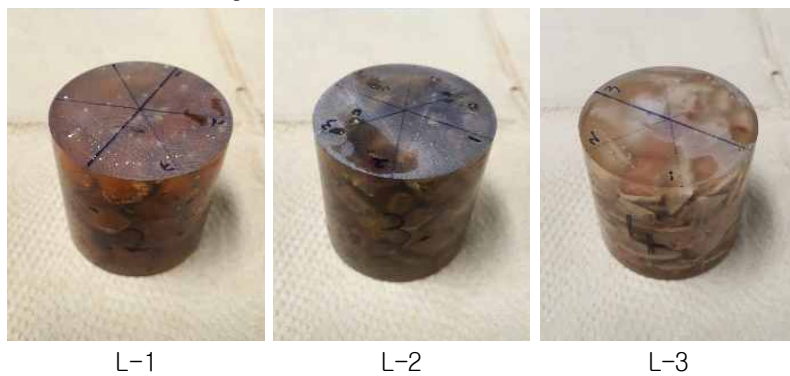


그림 54. Appearance of polymer solidified body
(Leaching test)

그림 55 ~ 그림 57는 침출 시험 동안 각 시편별 침출액의 pH 및 전기전도도(EC, Electrical Conductivity)를 침출 시간에 따라 나타내었다. pH 및 전기전도도(EC)는 2 hour 에서 1 day 까지 증가하였다가, 1에서 5 day 까지 감소하는 양상을 보였다. 19 일 부터 90 일까지 침출 시간이 누적됨에 따라 pH와 전기전도도(EC)가 계속해서 증가함을 보였다.

그림 55 ~ 그림 57에서 보듯이 시편별 pH와 전기전도도의 증가 및 감소 격차가 불규칙함을 보였으며, 특히 콘크리트 펠렛이 함유된 시편은 90일에 전기전도도가 증가함을 보였다[57]. 이는 시편 표면에 돌출된 일부 작은 기공으로부터 밀접하게 붙어있는 펠렛이 침출수와 접촉함에 따라, 펠렛에 함유된 일부 금속이온이 침출되어 전기전도도가 높아진 것으로 판단된다[58,59].

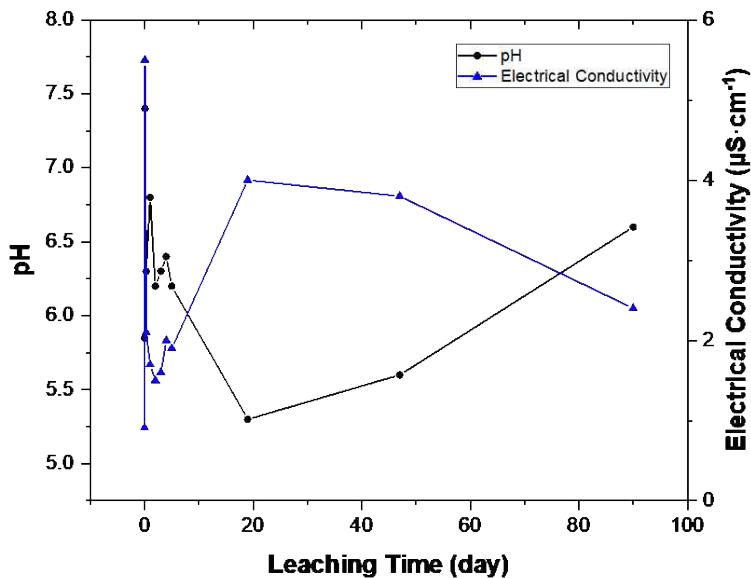


그림 55. pH and EC with a leaching time - Specimen with soil pellets [Unit : pH, $\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$]

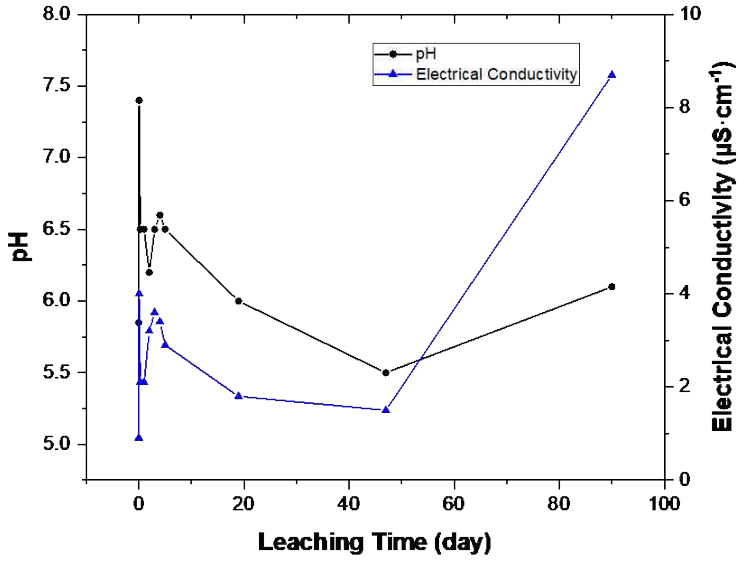


그림 56. pH and EC with a leaching time - Specimen with concrete pellets

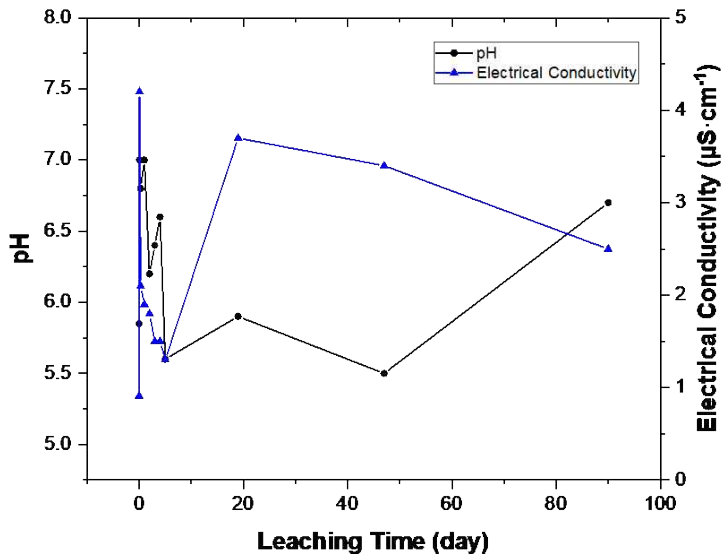


그림 57. pH and EC with a leaching time - Specimen with concentrated waste pellets

보수적인 측면으로, 시편 중 비교적 전기전도도가 높게 측정된 콘크리트 펠렛이 함입된 시편에 대하여, 그림 4658 에 방사성 지표에 의한 침출 데이터를 나타냈다. 일반적으로 Co 에 대한 침출 결과는 Cs, Sr 의 침출 결과보다 훨씬 우수했다. 이는 동일한 침출 시간 동안 시편에서 Co 의 침출량이 Cs, Sr 보다 적다는 것을 의미한다. 이어서 유효확산계수로부터 계산된 10 개의 침출 간격에서의 침출성 지수를 확인하였다. 그 결과, 침출성 지수는 각각 Co, Cs 그리고 Sr 에 대해 평균 17.36, 12.69 그리고 13.54 이었다. 이는 중·저준위 방사성폐기물 처분장의 폐기물인수기준(Waste Acceptance Criteria, WAC)에서 요구하는 6 이상의 침출 지수(각각 Co, Cs, Sr)에 대하여 만족함을 보인다. 즉, Co, Cs, Sr 에서 모두 핵종 확산성에 대한 우수한 특성을 나타냈다[59,60].

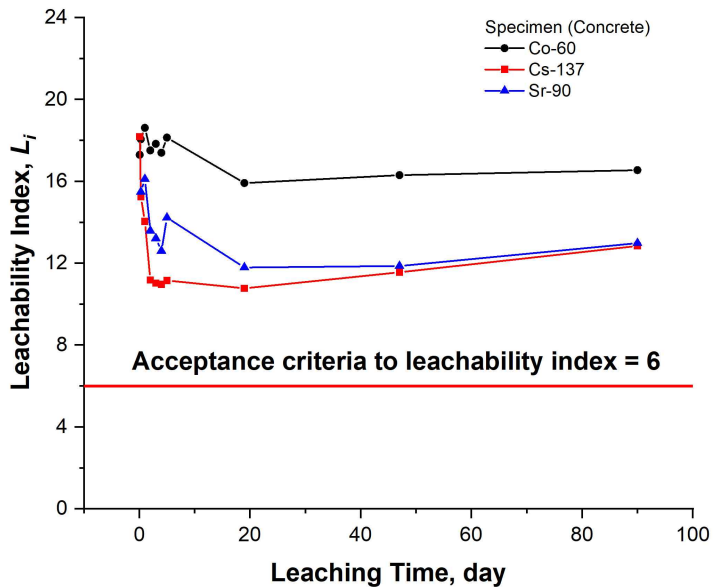


그림 58. Comparative analysis of leachability index (L_i) with the leaching time

제 4절 . 방사성폐기물의 감용 효과 분석

1. 방사성폐기물 감용 효과 분석 방법

일반적으로 방사성폐기물 처리에서 가장 중요한 요소는 감용(Volume reduction)이며, 이는 폐기물의 부피를 감소시키는 것을 의미한다. 그리고 방사성폐기물 처리공정의 효율을 나타내는 인자로 감용비(Volume reduction ratio)가 사용된다. 이는 처리 전과 처리 후의 방사성폐기물 부피의 비로 표시되며, 식(7)과 같다 [61].

Volume reduction ratio(VR)

$$\text{Volume before treatment} / \text{Volume after treatment} = V_i / V_f = VR \quad (7)$$

한편, 본 연구에서는 처분부적합한 분말상의 방사성폐기물을 처분하고자 분말을 펠릿화(Pelletization)하고 이를 함유한 폴리머 고화체를 제작하였다. 이러한 이유로 제조된 펠릿과 고화체의 체원을 정밀하게 측정하여, 각 기준별 Volume Reduction Factor(VRF)를 구하고 이를 Volume reduction ratio(VR)로 환산하였다. 왜냐하면, 무게는 밀도와 관련이 있고 부피는 밀도와 직결되어 있기 때문이다. 식(8)과 식(9)에서 보듯이 분말기준 감용비(VRF_p)는 ‘펠릿의 밀도/분말의 밀도’, 고화체 기준 감용비(VRF_{WF})는 ‘폴리머 고화체 내의 펠레의 무게를 밀도로 환산한 값/동일한 부피 내의 분말의 밀도’로 계산하였다. 특히, 분말기준 감용비의 경우 장치의 설계치(roll gap = 0 mm)와, 펠릿 제조 시 측정된 평균치(roll gap = 1 mm) 두 가지 경우를 고려하여 계산하였다.

Volume reduction based on powder(VRF_p):

$$\frac{\text{Density of Pellet} (g \cdot cm^{-3})}{\text{Density of Powder} (g \cdot cm^{-3})} = \text{Volume Reduction Factor}_{\text{Powder}} \quad (8)$$

Volume reduction based on waste form(VR_{WF});

$$\frac{\text{Density of the Pellet} \in \text{the Waste Form } (g \cdot cm^{-3})}{\text{Density of the Powder} \in \text{the Same Volume } (g \cdot cm^{-3})} = \text{Volume Reduction Factor}_{\text{Waste Form}} \quad (9)$$

2. 모의 분말시료의 감용비 평가

롤 컴팩터의 최적 운전기준(operating conditions)을 적용하여, 고밀도 및 고건전성 펠렛을 제조하였다. 이어서 분말 시료별 펠렛으로 성형한 데이터를 이용해 분말의 펠렛화에 따른 감용비를 평가하였다. 앞서 설명한 실험방법에서의 수식(8), (9)를 참고하였으며, 이를 이용해 분말 및 고화체 기준으로 감용비를 계산하였다. 감용비 평가는 분말의 겉보기 밀도와 롤 갭의 크기를 참고하여 계산하였으며, 분말 기준 결과는 표 25, 고화체 기준 결과는 표 26에 나타냈다.

표 25. Evaluation result of powder - based volume reduction ratio

Sample type	Device operating conditions ^{a)}			Weight of pellet (g)	Bulk density		Volume reduction ratio	
	R.S. (rpm)	H.P. (MPa)	F.S. (rpm)		Gap ^{b)} =0 (g·cm ⁻³)	Gap ^{c)} =1 (g·cm ⁻³)	Gap ^{b)} =0 (QUNIT)	Gap ^{c)} =1 (QUNIT)
Soil	2.5	28	15	1.06	4.17	3.04	3.39	2.47
			20	1.17	4.61	3.35	3.74	2.73
			25	1.19	4.69	3.41	3.81	2.77
			30	1.19	4.69	3.41	3.81	2.77
			35	1.22	4.80	3.50	3.90	2.84
Concrete	2.5	28	10	0.89	3.50	2.55	3.47	2.52
			15	1.05	4.13	3.01	4.09	2.98
			20	1.07	4.21	3.07	4.17	3.04
			25	1.11	4.37	3.18	4.33	3.15
			30	1.05	4.13	3.01	4.09	2.98
Concentrated waste	2.5	28	20	0.87	3.43	2.49	4.51	3.28
				0.88	3.46	2.52	4.56	3.32
				0.95	3.74	2.72	4.92	3.58

a) Operating conditions (Roll speed, Hydraulic pressure, Feeding speed)

b) Gap = 0 mm (Sample volume = 0.254 cm³)

c) Gap = 1 mm (Sample volume = 0.349 cm³)

표 25 에서 보듯이 분말의 펠릿화에 따라 계산된 감용비는 롤 갭(roll gap)이 0 mm 인 경우에 토양 3.39 ~ 3.90, 콘크리트 3.47 ~ 4.33, 농축폐액 4.51 ~ 4.92 으로 계산되었다. 그리고 롤 갭이 1 mm 인 경우는 토양 2.47 ~ 2.84, 콘크리트 2.52 ~ 3.15, 콘크리트 3.28 ~ 3.58 으로 계산되었다. 즉 롤 갭이 1 mm 인 보수적 관점에서 평균 감용비가 토양 2.72, 콘크리트 2.93, 농축폐액 3.39 으로 계산되며, 이것은 펠릿화를 통해 분말이 1 / 2.72 ~ 3.39 배로 압축될 수 있음을 의미한다.

3. 폴리머 고화체의 감용비 평가

표 26 에서 보듯이 고화체 기준 감용비는 토양 1.14 ~ 1.17, 콘크리트 1.23 ~ 1.34, 농축폐액 1.48 ~ 1.49 으로 계산되었다. 즉 평균 감용비가 토양 1.15, 콘크리트 1.29, 농축폐액 1.49 으로 계산되며, 이것은 펠릿을 충전한 고화체가 1 / 1.15 ~ 1.49 배로 감용 될 수 있음을 의미한다.

표 26. Evaluation result of polymer waste form - based volume reduction ratio

Incorporated material type	Size of specimen		Sample volume (cm ³)	Weight of specimen			Powder weight ^{b)} (g)	Volume reduction ratio ^{c)} (QUNIT)
	Diameter (mm)	Height (mm)		Powder ^{a)} (g)	Epoxy (g)	Total (g)		
Pellet (Soil)	50.00	99.06	194.41	280.39	42.22	322.61	239.12	1.17
	49.92	98.86	193.39	270.18	52.36	322.54	237.87	1.14
	49.79	99.48	193.57	272.46	52.86	325.32	238.09	1.14
Pellet (Concrete)	49.94	100.90	197.51	268.18	57.85	326.03	199.49	1.34
	49.88	98.09	191.55	253.83	65.99	319.82	193.47	1.31
	49.97	105.13	206.10	256.46	79.8	336.26	208.16	1.23
Pellet (Concentrated waste)	49.91	100.46	196.46	222.91	97.06	319.97	149.31	1.49
	49.93	100.74	197.17	222.20	96.91	319.11	149.85	1.48
	49.92	99.82	195.24	221.01	94.76	315.77	148.38	1.49

a) Weight of pellets incorporated within the solidified body

b) Weight of powders incorporated within the same volume (Same volume = Specimen volume)

c) Weight ratio within the same volume (Pellet weight^{a)}/Powder weight^{b)})

제 5장 . 결론

분산성/입자성의 분말 방사성폐기물은 처분부적합 방사성폐기물으로써 처분장에 바로 처분할 수가 없으며, 비분산성이 되도록 처리 및 포장을 통해 처분할 수가 있다. 처분비용의 절감과 처분장 수용성 향상을 위하여, 본 연구에서는 롤 컴팩션(Roll Compaction) 기술을 적용해 분말 방사성폐기물 모의 시료를 펠릿화 하였으며, 이들 펠릿을 용기에 충전해 폴리머로 고화처리를 수행하였다. 이어서 제조된 펠릿 폴리머 고화체의 특성평가를 수행하였으며, 이들 결과를 종합해 다음과 같은 결론을 얻었다.

펠릿 제조 시 분말의 무기화학적 조성, 압축성, Bulk density 에 기인하여, 분말 시료별 펠릿의 건전성이 달라질 수 있음을 확인했다. 이때 비교적 분말 입자 크기가 작은 농축폐액 분말의 경우 펠릿화에 어려움이 있었다. 이러한 이유로 인하여 다른 크기와 모양의 펠릿 생산, 분말의 입도 크기별 펠릿화 실험을 통해 포괄적인 데이터 수집이 필요하다 판단되었다. 이어서 롤 컴팩터를 이용하여, 제조한 고밀도 펠릿의 강도는 5.2 ~ 28 MPa 이었다. 그리고 분말의 감용 정도를 알아보기 위해서 시료별 제조된 펠릿의 무게, 밀도, 부피를 정밀하게 측정하였다. 감용비는 분말 기준으로 2.72 ~ 3.39 이었으며, 펠릿을 함입한 고화체의 감용비는 1.15 ~ 1.49 이었다. 추후 분말 시료별 롤 컴팩터의 최적 운전기준을 찾아 krry 적용한다면, 분말기준 및 고화체 기준 감용비는 더욱 기대될 것으로 사료된다.

고화체 특성평가에 앞서 제조된 시편의 다음과 같이 준비되었다. 고화체 시편 내의 펠릿 주입량은 평균 60 w.t.% 이었다. 압축강도 시험 및 열순환 시험에 사용되는 시편의 경우, 사용된 폴리머에 대하여 epoxy resin(YD-128), Hardener(G-1034)의 배합비율이 65:35 이며, 희석제(LGE) 주입량을 혼합물 전체의 10%로 하였다. 그리고 방사선조사, 침수 및 침출 시험에 사용되는 시편의 경우, 희석제(LGE) 주입량을 혼합물 전체의 10 %로 조절하였으며, 그 외 조건은 동일하였다. 이는 희석제(LGE)의 주입량이 늘어날수록 펠릿의 함입이 용이하지만 강도는 약해지기 때문이다. 또한 고화체는 60 ℃로 유지되는 항온조 내에서 경화시켰다. 즉 펠릿을 함입해 고형화된 폴리머 고화체의 특성평가를 수행하였다.

압축강도 시험은 KS-F-2405 기준에 따라 수행하였으며, 25.50 ~ 28.20 MPa의 압축강도 값이 측정되었다. 열순환 시험의 경우 미국 ASTM B553에 따라 수행하였으며, 시험 후 시편의 외관에는 균열 및 팽윤과 같은 큰 외형적 변화가 없었다. 열순환 시험 후 압축강도는 평균 27.10 MPa으로 구조적 건전성을 유지한 것으로 밝혀졌다. 방사선조사 시험은 미국 원자력규제위원회의 Technical Position on Waste Form에 따라 수행되었다. 9.40×10^4 Gy/hr의 평균흡수선량률(Average Absorbed dose rate)로 약 106.5시간 조사되어 총흡수선량률(Total absorbed dose)은 1.00×10^6 Gy까지 수행되었다. 시험 후 시편은 경화에 따른 약간의 색상 변화만 있을 뿐, 시험 후 압축강도는 23.90 ~ 37.60 MPa 값을 보였다.

침수 및 침출 시험은 미국의 원자력규제위원회에서 제시한 바와 같이, ANS 16.1의 침출 시험에 연계하여 수행되었다. 침수시험은 90일 동안 침수된 시편에서 외관상의 변화나 결함이 발견되지 않았으며, 시험 후 압축강도는 33.19 MPa ~ 42.89 MPa으로 측정되었다. 그리고 시험 전과 후로 고화체의 제원을 비교하였을 때, 무게와 부피 변화율이 1% 미만에서 유지된 것으로 확인되었다. 침출 시험 결과, 침출성 지수는 각각 Co, Cs 그리고 Sr에 대해 평균 17.36, 12.69 그리고 13.54 이었다. 이는 중-저준위 방사성폐기물 처분장의 폐기물인수기준(Waste Acceptance Criteria, WAC)에서 요구하는 6 이상의 침출 지수(Co, Cs, Sr)에 대하여 훨씬 상회함을 보였다.

결과적으로 펠렛을 충전한 폴리머 고화체의 성능은 미국 원자력규제위원회의 Technical Position on Waste Form 규정에 만족함을 보였다. 그러나 본 기술이 상용화 단계로 진입하기 위해서는 감용화 및 고화 공정에 대한 최적화가 필요하다. 그러므로 펠렛과 고화체 간의 상관관계, 고화 매질에 대한 후보군 선정 연구 등 추가적인 연구를 수행중에 있다. 따라서 방사성폐기물의 펠렛화 및 폴리머 고화 연구가 완성되어 상용화된다면, 처분장의 수용성 증대와 더불어 처분비용을 감소할 수 있는 기술로 판단된다. 더 나아가 분산 특성을 갖는 분말 방사성폐기물과 처분부적합 방사성폐기물 등 처리기술 미확보로 인해 처리/처분하지 못하고 있는 문제점들에 대하여, 이를 해결하는 것에 크게 활용될 수 있을 것으로 사료된다.

참고문헌

- [1] International Atomic Energy Agency, Selection of technical solutions for the management of radioactive waste, IAEA-TECDOC-1817 (2017).
- [2] International Atomic Energy Agency, Strategy and methodology for radioactive waste characterization, IAEA-TECDOC-1537 (2007).
- [3] International Atomic Energy Agency, Treatment of low-and intermediate waste concentrates, Technical Report Series No. 82 (1985).
- [4] H. Masuda, K. Higashitani, and H. Yoshida, Power technology handbook, 3rd ed., 599-613, CRC Press, New York (2006).
- [5] J.R. Johanson, A rolling theory for granular solids, J. Appl. Mech. 32 (1965) 842-848.
- [6] G. Reynolds, R. Ingale, R. Roberts, S. Kothari, and B. Gururajan, Practical application of roller compaction process modeling, Comput. Chem. Eng. 34 (2010) 1049-1057.
- [7] Lim, S.H., Kim, S.I., Song, J.S., Kim, K.H., 2021. A study on the pelletizing condition for roll compaction of powdered radioactive wastes, Powder Technol., 384, 554-563.
- [8] Nuclear Regulatory Commission U.S.(USNR), Technical Position on Waste Form, Rev.1, (1991)
- [9] 정민영, Pellet화를 적용한 처분부적합 방사성폐기물 고화 공정 최적화 연구, 조선대학교 원자력공학과, 박사학위 논문, (2020)
- [10] 원자력안전위원회 고시, 방사성폐기물 분류 및 자체처분 기준에 관한 규정, 제2020-6호
- [11] 이건재 외 5인, 중·저준위 방사성폐기물의 특성 및 분류기술 확립을 위한 연구, 한국원자력안전기술원, KINS/HR-111, (1995)
- [12] International Atomic Energy Agency, Innovative Waste Treatment and Conditioning Technologies at Nuclear Power Plants, IAEA-TECDOC -1504, (2006)
- [13] 김창락, 원전 해체폐기물 관리 동향, 한국환경산업 기술원, 2016-138호, (2016)
- [14] Waste from Decommissioning of Nuclear Power Plants, SKI Technical Report 92:17(1992)
- [15] 김희근 외, 원전 해체폐기물 인수기준(안) 설정 용역 최종보고서,

한국원자력환경공단 (2018)

- [16] 임상현, 원전 해체 슬러지 폐기물 처분을 위한고화체 특성평가 연구, 조선대학교 원자력공학과, 석사학위 논문, (2020)
- [17] AIF/NESP-036, Guideline for Producing Commercial Nuclear Power Plant Decommissioning Cost Estimate, Vol.1, 1986
- [18] US DOE, Decommissioning Benchmarking Study, Jan.15, 1997
- [19] EPRI 1015121, Rancho Seco Nuclear Generating StationDecommissioning Experience Report Detailed Experiences, (1989-2007)
- [20] EPRI 1016773, San Onofre Nuclear Generating Station - Unit 1 Decommissioning Experience Report , Detailed Experiences (1999-2008)
- [21] 한국원자력환경공단, 중·저준위 방사성폐기물 관리 시행계획, (2018)
- [22] International Atomic Energy Agency, Managing Low Radioactivity Material from the Decommissioning of Nuclear Facilities, Technical Reports Series No. 462
- [23] IAEA, Radiation Protection in Paediatric Radiology, Safety Reports Series No.71, (2012)
- [24] 10 CFR 61, licenses for the disposal of low-level radioactive wastes (LLW)
- [25] DOE 435.1, Low-level Waste Requirements
- [26] 산업통상자원부 고시, 방사성폐기물 인수방법 등에 관한 규정, 2016-230호
- [27] 산업통상자원부 고시, 방사성폐기물 인수방법 등에 관한 규정, 2016-230호
- [28] 원자력안전위원회 고시, 중·저준위 방사성폐기물 인도규정, 제2021-26호
- [29] 한국원자력환경공단, 방사성폐기물 인수검사, LILW-운영-방사-028
- [30] 한국원자력환경공단, 고형화 방사성폐기물 구조적 건전성 시험 검증, LILW-운영-방사-048
- [31] Korea radioactive waste agency, LILW disposal facilitySafety reports, 4.12A-103, (2008)
- [32] 광경길 외 1인, 방사성농축폐액처리·처분을 위한 신 고화 매질 개발“, 한국원자력연구원, KAERI-RR-3219, (2010)
- [33] Srinivasan Shanmugam, “Granulation techniques and technologies: recent progresses” , Bio Impacts vol. 5(1) 55-63 (2015)
- [34] J.R. Johanson, “A Rolling Theory for Granular Solids” , J. Appl. Mech., 32(4), 842-848, (1965)

- [35] Yus Aniza Yusof, Andrew C.Smithb, Brian J.Briscoe, Roll compaction of maize powder, *Chemical Engineering Science* 60(2005) 3919-3931
- [36] 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 (2005) 3891-3897.
- [37] 토양오염 및 처리공학, 정명채, 한국광물자원공사, (2007)
- [38] Soil Taxonomy Second Edition, United States Department of Agriculture, (1999)
- [39] J.H. Kim, S.M. Kim, I.H. Yoon, S.J. Choi, I.G. Kim, Selective separation of Cs-contaminated clay from soil using polyethylenimine-coated magnetic nanoparticles, *Science of the Total Environment*. 706 (2020) 136020.
- [40] Y.J. Lee, K.W. Lee, B.Y. Min, D.S. Hwang, J.K. Moon, The characterization of cement waste form for final disposal of decommissioning concrete wastes” , *Annals of Nuclear Energy*. 77 (2015) 294-299.
- [41] International Atomic Energy Agency, Chemistry Programme for Water Cooled Nuclear Power Plants, Specific Safety Guide, No. SSG-13 (2011)
- [42] G.G. Bodman, G.K. Constantin, Influence of particle size distribution in soil compaction, *Journal of Agricultural Science*. 35 (1965) 567-591.
- [43] T.P.J. Linsinger, V. Kestens, and J. Charoud-Got, Preparation and characterisation of two polydisperse, non-spherical materials as certified reference materials for particle size distribution by static image analysis and laser diffraction, *Powder Technol.* 343 (2019) 652-661.
- [44] C.S. Omar, R.M. Dhenge, and A.D. Salman, Roller compaction: Effect of morphology and amorphous content of lactose powder on product quality, *Int. J. Pharm.* 503 (2016) 213-219.
- [45] H. Mangal, M. Kirsolak, and P. Kleinebudde, Roll compaction/dry granulation: Suitability of different binders, *Int. J. Pharm.* 503 (2016) 213-219
- [46] A.R. Muliadi, J.D. Litster, and C.R. Wassgren, Validation of 3-D finite element analysis for predicting the density distribution of roll compacted pharmaceutical powder, *Powder Technol.* 237 (2013) 386-399.
- [47] B. Rambali, L. Baert, E. Jans, and D.L. Massart, Influence of the roll

- compactor parameter settings and the compression pressure on the buccal bio-adhesive tablet properties, *Int. J. Pharm.* 220 (2001) 129-140.
- [48] Y.A. Yusof, A.C. Smith, and B.J. Briscoe, Roll compaction of maize powder, *Chem. Eng. Sci.* 60, (2005) 3919-3931.
- [49] 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 (2012) 1107-1113.
- [50] 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 (2010) 14- 23.
- [51] Korean Agency for Technology and Standards, 2010. Standard Test Method for Compressive Strength of Concrete, KS F 2405.
- [52] ASTM, 1979. Test Method for Thermal Cycling of Electroplated Plastics, ASTM B553.
- [53] NRC, Design Guidance For Solid Radioactive Waste Management Systems Installed In Light-Water-Cooled Nuclear Power Reactor Plants, Branch Technical Position, BTP-11-3
- [54] Nuclear Regulatory Commission, 1991. Technical Position on Waste Form, Rev. 1.
- [55] American Nuclear Society, 2003. Measurement of the Leachability of Solidified Low-Level Radioactive Wastes by a Short-term Test Procedure, ANSI/ANS-16.1.
- [56] 정경환 외 7인, 방사성슬러리 폐기물의 시멘트 고화연구, 한국원자력연구원 (2002)
- [57] Y.Y. Ji, K.K. Kwak, D.S. Hong, W.S. Ryu, Characterization of polymer-modified cement as a solidification agent for the radwaste, *Annals of Nuclear Energy.* 43 (2012) 99-105.
- [58] Q. Pu, L. Jiang, J. Xu, H. Chu, Y. Xu, Y. Zhang, Evolution of pH and chemical composition of pore solution in carbonated concrete, *Constr. Build. Mater.* 28 (2012) 519-524.
- [59] D.S. Koo, H.H. Sung, S.S. Kim, G.N. Kim and J.W. Choi, Characteristics of Cement Solidification of Metal Hydroxide Waste, *Nucl. Engi. Technol.* 49 (2017) 165-171.
- [60] Y.J. Lee, K.W. Lee, B.Y. Min, D.S. Hwang, J.K. Moon, The

characterization of cement waste form for final disposal of decommissioning concrete wastes, *Annals of Nuclear Energy*. 77 (2015) 294–299.

- [61] A. Michrafy, H. Diarra, J.A. Dodds, Analysis of strain stress state in roller compaction process, *Powder Technol.* 208 (2011) 417–422.