

'95 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

한국원자력연구소 실증소각시설에서의 방사성폐기물 실증소각

양희철, 김인태, 김정국, 김준형
한국원자력연구소

서용칠
연세대학교

요 약

한국원자력연구소 실증소각시설의 성능 및 운전성을 입증하기 위하여 방사성동위원소를 포함한 모의폐기물 및 원자력발전소 발생 방사성폐기물에 대한 시험소각을 실시하였다. 비휘발성인 ^{60}Co 및 ^{54}Mn 의 거동은 비산재의 거동과 거의 유사하였으며 각각의 제염계수는 4.7×10^5 및 6.2×10^5 이었다. 반휘발성인 ^{137}Cs 의 경우에는 850°C 및 700°C 의 다른 소각온도에서 각각 2.8×10^4 , 2.6×10^3 으로 소각온도의 의존성을 보여주었다. 원자력발전소에서 운반된 건조 방사성폐기물(DAW)에 대한 시험소각은 성공적으로 수행되었다. 총 베타/감마 방사능에 대한 제염계수가 1.1×10^5 이었으며 결과적인 연돌에서의 배출농도는 0.019 Bq/Nm^3 으로 기체상 배출물에 대한 최대허용농도를 만족시킬 수 있었다.

1. 서론

소각은 가연성 방사성폐기물의 처분전 부피감소 및 안정화에 효과적인 것으로 알려져 있지만 일반적으로 방사성물질의 대기로의 배출을 우려할 수도 있다. 그러나 현재 운전되고 있는 방사성폐기물 소각시설은 방사성핵종에 대한 대기배출기준을 충분히 만족시키고 있는데[1] 이것은 소각배기체내에 입자상으로 존재하는 비휘발성 방사성핵종은 적합한 배기체 처리장치를 통한 제거가 용이하고 휘발성 및 비휘발성 핵종은 충분히 적은 농도로 방사성폐기물에 함유되어 있기 때문이다. 또한 소각을 통하여 대부분의 비휘발성 핵종을 소각로 바닥재에 잔존시킴으로서 큰 감용효과를 얻음은 물론 미량의 비휘발성 핵종만 배기체 여과장치를 통한 제거가 용이한 비산재 및 미연소 탄소 분과 같은 입자상 물질에 침적된 형태로 배기체를 통해 배출시킨다. 반면 방사성 요오드, 방사성 카본 및 삼중수소와 같이 소위 영구기체(permanent gas)라고 표현되는 휘발성 핵종들은 이슬점 이상으로 유지되는 건조배기체 처리과정에서는 항상 기체상으로 존재한다[2]. 따라서 이러한 휘발성 핵종에 대한 배기체 처리계통에서의 제염은 기대할 수 없다. 세슘이나 루테튬같은 반휘발성 핵종들은 고온의 소각로에서 휘발하지만 배기체 냉각을 통해 응축된 후 여과장치에서 여과될 수도 있다. 따라서 방사성 폐기물 소각시의 배기체 처리계통의 신뢰성은 주로 배기체에 동반된 비휘발성 및 반휘발성 핵종의 제거성능에 좌우된다. KAERI에 설치된 실증소각시설에서 방사성 핵종을 추적자로 이용한 소각실험과 실패기물의 시험소각을 통하여 배기체처리계통의 신뢰성을 평가하고자 하였다. 비휘발성 및 반휘발성 핵종의 소각시 배기체동반, 저온 배기체 처리계통을 통한 이들의 제거 및 방

사성 물질의 제거효율과 입자상 물질의 제거효율과의 관계 등에 대해 논하였다. 아울러 실패기물 소각을 통한 전베타/감마 방사능의 분포 및 최종 배기체의 방사능 농도를 평가하였다.

2. 공정 및 실험

실증소각시설의 공정도를 그림 1에 나타내었다. 공정은 두 연소로, 배기체 냉각 및 처리계통으로 구성된다. 습식세정탑을 사용하지 않은 건식배가스 처리계통은 열교환기, 공기혼합 냉각기, 포대여과기 및 고성능 공기여과기로 구성된다. 시험소각방법은 1992-1993년을 통해 수행된 모의 폐기물 소각실험 결과[3,4]에 기준을 두었으며 표 1에 시험소각방법을 나타내었다. 약 400℃ 까지 예열후 비방사성 모의폐기물을 투입하여 지정운전온도까지 상승시킨 다음 추적자를 함유한 모의폐기물을 지속적으로 투입하여 지정온도 근처로 유지되도록 하였다. 추적자폐기물의 투입직후부터 소각로 후단, 포대여과기 후단 및 고성능공기여과기 후단에서 배기체 시료채취를 실시하였다. 배기체 시료채취장치는 시료채취관, 배기체온도에 따라 선택적으로 냉각 또는 가열되는 시료이송관, 시료여과장치, 수분제거장치와 유량조절 및 기록장치로 차례로 구성되며 소각로후단부에 설치된 시료채취장치의 구성도를 그림 2에 나타내었다. 시료채취필터는 직경 110 mm, 평균기공 0.45 μm인 것을 사용하였으며 운전중에 압력손실은 크지 않았다. 시료채취필터의 비방사능을 저준위 방사능 분석기(LB 110, Berthold)을 통해 측정하여 소각로 및 배기체 처리계통의 제염계수를 평가하였다.

3. 결과 및 논의

3.1. 제염계수 및 제거효율

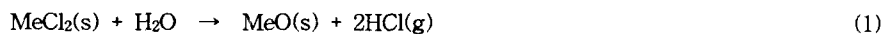
계통의 제염계수(DF)는 투입되는 폐기물의 방사능의 소각 및 배기체 처리공정후 배기체로 배출되는 배기체의 방사능에 대한 비로 나타내어지며 이는 제거효율(RE)과 다음과 같은 상관관계가 있다.

$$RE(\%) = \frac{\text{Input activity} - \text{Output activity}}{\text{Input activity}} \times 100 \% = (1-1/DF) \times 100\%$$

표 2에 추적자 실험의 방법 및 제염계수 및 방사능 분포의 산정에 필요한 각 시료채취위치에서 측정된 배기체의 비방사능과 최종배가스의 비방사능 및 공정변수들과 이로부터 계산된 제염계수를 나타내었다.

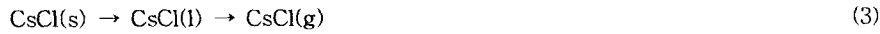
3.2. 소각로에서의 배기체동반 및 휘발

폐기물의 연소과정에서 CoCl_2 및 MnCl_2 는 각각 CoO 및 MnO 로 다음 반응식 (1)에 의해 변화하지만 변화된 산화물은 안정되어 정상소각온도에서 쉽게 휘발하지 않는다[5]. 이러한 안정된 산화물의 가능한 휘발경로는 다음 식(2)와 같은 환원반응인데 이는 고분자폐기물의 급격한 산화반응에 의해 국부적으로 산소가 부족할 때 일어날 수 있다.



환원반응에 의해 생성된 금속원소성분들도 소각운전온도에서 자체의 증기압이 매우 낮기 때문에 쉽게 휘발하지 않는다. 표 2에 나타난 DF_1 의 값들은 대부분의 코발트 및 망간의 소각로하단부어 채속에 남고 10% 미만의 방사성물질만 입자상물질의 형태로 배기체에 동반됨으로서 여과장치를 통해

대부분에 제거되어 총괄제염계수는 10^5 이상이 됨을 보여준다. 이의는 반대로 연소조건에서 안정된 세슘염화물은 상당한 증기압을 가지므로 다음의 과정에 의해 쉽게 휘발한다.



850℃ 및 700℃에서 CsCl(l)의 평형증기압은 각각 7.83×10^4 및 2.13×10^2 mmHg이다[6]. 낮은 증기압으로 시험 3의 DF_1 은 시험 1의 DF_1 과 유사한 값을 보였다. 시험 4의 경우에는 낮은 증기압으로 인해 시험 3의 약 50분의 1에 해당하는 제염계수를 보였다. 표 3에서 비휘발성핵종인 코발트 및 망간의 경우 90% 이상이 소각재에 남으며 반휘발성 핵종인 세슘의 경우 운전온도에 따라 큰 차이를 보이며 700℃에서는 90% 이상이 소각재에 남았지만 850℃에서는 60%정도만 소각재에 남는 것을 알 수 있다. 실패기물의 소각실험의 경우 추적자 실험의 결과로부터 예견된 배기체 동반률 보다 높은 배기체 동반률을 보여 시험 3의 세슘추적자 실험의 결과와 유사한 값을 보였다.

3.3. 배기체 처리공정에서 방사성 물질 및 입자상 물질의 제거

3.3.1. 후연소로 및 포대여과기

배기체에 포함된 방사성물질 및 입자상 물질의 제거효율을 그림 3에 나타내었다. 원심집진형 후연소장치와 포대여과기의 조합을 통한 입자제거효율은 99.6%에서 99.8% 범위로 모든 시험소각과정을 통하여 안정된 높은 값을 보였다. 비휘발성 코발트 및 망간의 제거효율은 99.8% 이상으로 제진효율보다 높은 값을 보였다. 세슘의 경우에는 700℃ 운전시에 96.2%, 850℃ 운전시에 96.0%였으며 원전 실패기물 소각시에는 98.7%를 보였다. 이러한 모든 결과들로부터 배기체에 동반된 비휘발성 핵종의 제거효율은 입자상 물질의 제거효율보다 높지만 반휘발성 핵종의 경우에는 그 반대가 됨을 보여준다.

3.3.2. 고성능 공기여과기

고성능 공기여과기를 통한 방사성물질의 제거효율은 95.9%에서 98.8%로 변화가 심했으며 입자상 물질에 대한 제거효율 또한 97.4% to 99.5%로 포대여과기에 비해 변화의 폭이 컸으며 세슘에 대한 제거효율이 코발트나 망간에 대한 제거효율보다 크게 나타났다. 실패기물 소각실험의 경우에는 다른 모든 추적자 실험에 비해 높은 제진효율 및 입자상 물질의 제거효율을 나타내었다.

3.3.3. 공기중 최대허용농도 및 배기체 배출농도

배기체 처리계통을 통한 배기체의 방사능 배출농도를 그림 4에 나타내었다. 배기체 처리계통 방사성 핵종의 휘발정도에 따라 5%에서 40%까지 배기체에 휘발되지만 배기체 처리계통을 통한 이의 제염은 충분히 이루어짐을 알 수 있다. 이를 보이기 위하여 ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{60}Co 및 DAW에 포함된 혼합된 핵종들에 대한 MPC 값[7]들을 함께 나타내었다. 실패기물 소각시 최종 배기체의 방사능은 MPC의 20분의 1로 규정을 충분히 만족시킬 수 있음을 알 수 있다.

4. 결론

동위원소를 이용한 추적자 모의폐기물 및 실패기물 소각실험의 결과로부터 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 비휘발성핵종인 세슘과 망간은 90% 이상이 소각재에 남았으며 배기체에 동반된 성분들도 효과적으로 처리되어 소각공정의 총괄제염계수는 10^5 이상이였다.

2. 예측한대로 반휘발성 세슘은 700℃의 소각온도에서 90%이상이 소각재에 남았지만 850℃의 소각 온도에서 약 60% 정도만 소각재에 남았다. 그러나 배기체에 동반된 세슘은 배기체냉각후 여과에 의해 효과적으로 처리되어 700℃ 및 850℃ 운전 각각에서 총괄제염계수는 2.8×10^3 및 2.6×10^4 이었다.
3. 실패기물 소각시의 총괄제염계수는 10^5 이상으로 최종배기체는 MPC의 20분의 1 정도에 불과해 실증소각시설에서 원전발생 가연성폐기물을 지속적으로 소각할 수 있음을 알 수 있다.

참고문헌

1. EPA520/1-91-010-1, Radiation and mix waste incineration, Background information document, Vol 1. - Technology, 2-8, USEPA, May (1991).
2. Safety series No. 108, Design and operation of radioactive waste incineration facilities, 60, IAEA, (1992).
3. KAERI/NEMAC/RR-62/92, The development of radioactive waste treatment technology (V), Dec. (1992).
4. KAERI/NEMAC/RR-94/93, The development of radioactive waste treatment technology(VI) -Incineration characteristics of burnable radwaste. Dec. (1993).
5. Hee-Chul Yang et al, Korean J. of Chem. Eng. 11(4), 232 (1994).
6. O. Kubaschewski and C. B. Alcock, Metallurgical Thermochemistry, 362, Pergamon Press (1979)
7. Notice of MOST 84-2, Regulations on radiation and etc. (1992)

Table 1. The summary on the program of tracer test series

test No.	tracer			simulated waste	target temperature of incinerator(℃)
	nuclide	activity (kBq)	chemical form		
1	Co-60	23,950	CoCl ₂	cloth	850
2	Mn-54	22,940	MnCl ₂	paper	850
3	Cs-137	18,870	CsCl	paper	700
4	Cs-137	18,870	CsCl	paper	850
5	dry active waste (11,800 kBq) ¹⁾				850

¹⁾ distribution: Co-58(3.7%), Co-60(55.0%), Mn-54(15.4%), Cs-134(5.1%) Cs-137(15.3%), others(5.5%)

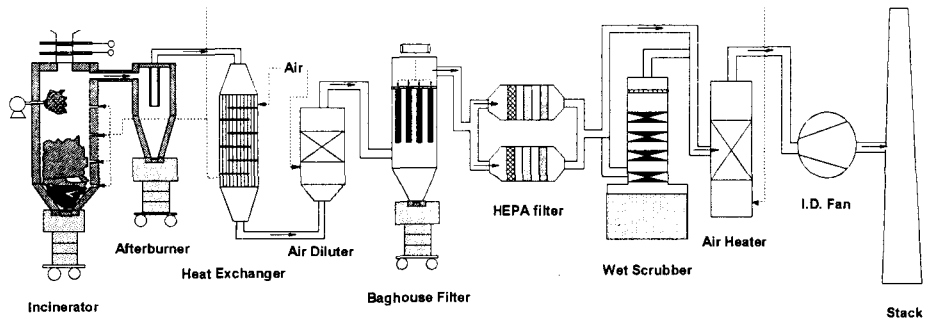


Figure 1. The schematic diagram of demonstration-scale incineration process

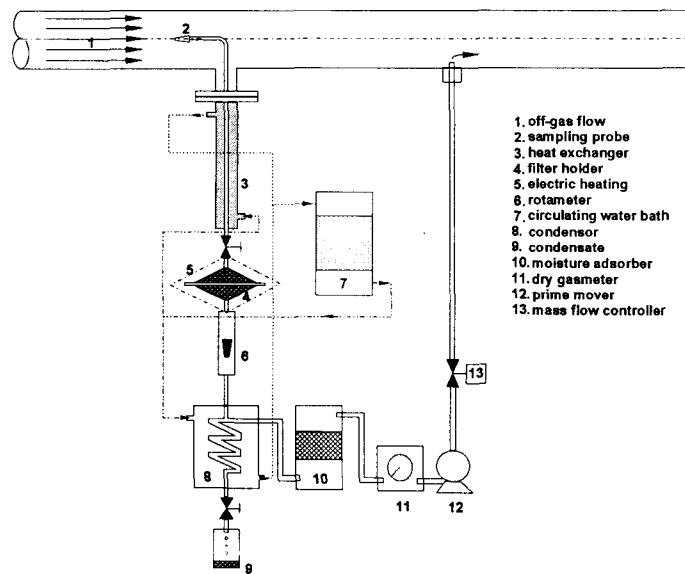


Figure 2. The schematic diagram of the particulate sampling train installed at the outlet of the incinerator

Table 3. Activity balance and entrainment of PM in the furnace

tracer	target temp. (C)	radioactivity balance			
		input	retention	entrainment	
⁶⁰ Co	820-880	23,950	21,849 (91.2%)	2,101 (8.8%)	
⁵⁴ Mn	815-875	22,940	22,167 (96.6%)	773 (3.4%)	
¹³⁷ Cs	685-730	18,870	17,399 (92.2%)	1,471 (7.8%)	
	835-885	18,870	11,632 (61.6%)	7,238 (38.4%)	
DAW	actual	820-880	11,800	7,202 (61.0%)	4,598 (39.0%)
	predicted ¹⁾	820-880	11,800	9,912 (84%)	1,888 (16%)

Table 2. Related parameter's values in measurement position for the evaluation of DFs and calculated DF

measurement position	parameter	test No.1	test No.2	test No.3	test No.4	test No.5		
tracer	$A_{t,r}$ (activity in feed, Bq)	23,950,000	22,940,000	18,870,000	18,870,000	11,800,000		
incinerator off-gas	$A_{g,i}$ (activity of sample filter, Bq)	2,936.2	1,004.8	1,219.0	9,178.0	9,644.5		
	G_i (sample gas volume, Nm ³)	1.950	1.814	1.156	1.769	3.251		
	V_i (off-gas flowrate, Nm ³ /h)	310.4	310.0	310.1	309.7	310.4		
Bagfilter off-gas	$A_{g,b}$ (activity of sample filter, Bq)	1.516	0.521	34.230	164.080	32.950		
	G_b (sample gas volume, Nm ³)	2.670	2.205	2.305	2.135	2.355		
	V_b (off-gas flowrate, Nm ³ /h)	840.3	840.1	840.2	840.0	840.4		
HEPA filter off-gas	$A_{g,h}$ (activity of sample filter, Bq)	0.066	0.054	1.682	12.003	1.154		
	G_H (sample gas volume, Nm ³)	6.600	7.500	11.750	9.250	60.010		
	V_H (off-gas flowrate, Nm ³ /h)	1,140.2	1,140.0	1,140.1	1,139.8	1,140		
DF for process unit		parameter relation		calculated value				
DF ₁	incinerator	$A_{t,r}/(A_{g,i} \times E_d \times V_i/G_i)$		1.1×10^1	3.0×10^1	1.3×10^1	2.6×10^0	2.6×10^0
DF ₂ × DF ₃	afterburner + baghouse filter	$(A_{g,i} \times V_i/G_i)/(A_{g,b} \times V_b/G_b)$		9.8×10^2	8.7×10^2	2.6×10^1	2.5×10^1	7.8×10^1
DF ₄	HEPA filter	$(A_{g,b} \times V_b/G_b)/(A_{g,h} \times V_H/G_H)$		4.2×10^1	2.4×10^1	7.6×10^4	4.4×10^1	5.4×10^2
DF	overall DF	DF ₁ × DF ₂ × DF ₃ × DF ₄		4.7×10^5	6.2×10^5	2.6×10^4	2.8×10^3	1.1×10^5

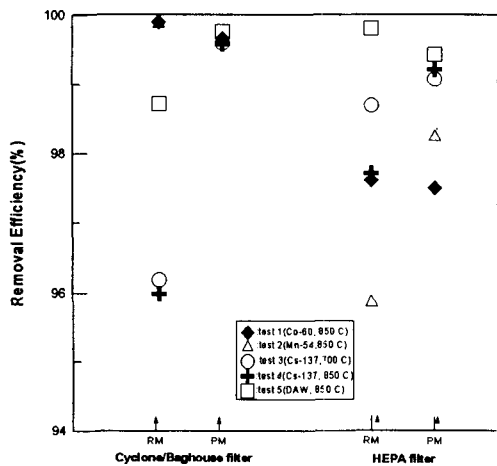


Figure 3. Removal efficiency for RM and PM entrained through the off-gas treatment system

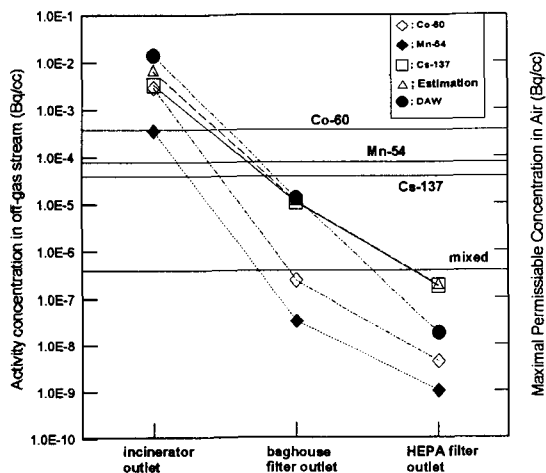


Figure 4. Change of activity concentration in off-gas stream and emission concentration vs. MPC (Estimation : summation of fractional efficiency based on tracer test results with assumption of the fraction as Co 60%, Cs 20% and Mn 20%)