

## 방산농축폐액 건조분말 유리화를 위한 전처리방안

김득만, 오형모, 신상운

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

kc2701@khnp.co.kr

### 1. 서론

가압수로 원자력발전소(고리1~4, 영광1~4, 울진1~4)에서 발생된 방산농축폐액은 1995년부터 농축폐액 건조설비(Concentrated Waste Drying System)를 이용하여 파라핀으로 고형화하고 있다. 파라핀 고화체는 제조과정 중 층분리로 인해 불균질한 고화체가 되기 쉬우며, 압축강도 및 침출특성이 불량하다. 파라핀 고화체의 단점으로 인해 방산농축폐액을 유리화하여 고화시키는 방법을 연구하게 되었다. 유리화기술은 방사성폐기물을 유리구조 속에 가두어 두는 기술로서 방사성물질이 환경으로 유출되는 것을 근본적으로 차단할 수 있다. 또한 유리 고화체는 압축강도가 우수하며 침출특성이 양호하다는 장점이 있다. 본 연구는 방산농축폐액을 유리화하기 적합한 형태로 전처리 할 수 있는 방안을 수립하는데 목적이 있다.

### 2. 실험 및 결과

농축폐액 건조설비에서 건조된 방산농축폐액은 건조분말형태로 배출된다. 건조분말을 유리화하기 위해 전처리공정 없이 설비에 투입할 경우 계통 내 형성된 부압에 의해 용융유리와 결합되기 전 배기체 설비로 유입될 가능성이 있다.

전처리방안은 상용설비가 개발되어 있거나 기존 연구성과물을 응용할 수 있는 정제화 방식, 과립화 방식 및 사출방식을 대상으로 검토하였다. 정제화 방식은 일반적으로 의약품 정제를 제작하는 방식으로 분말을 첨가제(결합제, 부형제, 윤활제, 봉해제)와 혼합 후 과립화(습식 조립법, 건식 조립법)하여 타정하는 방식과 분말을 첨가제와 혼합 후 과립생성공정 없이 타정기에서 타정하는 직접 타정방식으로 분류된다. 설비운전 및 유지보수 등의 편리성과 설치공간을 고려하여 공정이 단순한 직접 타정방식이 유리하다고 판단된다. 직접 타정방식의 공정은 크게 분말과 첨가제를 혼합하는 혼합공정과 타정기에서 정제를 제작하는 타정공정으로 분류된다. 혼합기의 주요형태로는 드럼형 혼합기, V 형 혼합기, 나선형 혼합기 등 종류가 다양하며, 타정기는 단발타정기와 연발타정기로 분류된다. 단발타정기의 경우 시간당 정제 제작수는 3,000 개 정도이고 연발타정기의 경우 시간당 정제 제작수는 40,000~130,000 개 정도이나 최근 성능이 개선된 다양한 설비가 개발되어 있다. 첨가제는 경도와 마손도를 개선하기 위해 사용되며 PVA (Polyvinyl alcohol), HPMC(Hydroxypropyl methylcellulose), HPC(Hydroxypropyl cellulose), Kollidon VA 64 등 다양한 첨가제가 사용된다.

정제제작 실험을 위해 방산농축폐액 건조분말과 유사한 모의 시료[붕사 61 %와 산화붕소( $B_2O_3$ ) 39 %]와 울진 2발전소 실폐기물을 사용하였다. 모의 시료를 사용하여 단발타정기에서 타정한 결과 일반정제의 경도와 마손도를 기준(경도 3 이상, 마손도 0.1 ~0.2 %)으로 하였을 경우 경도 부분에서는 만족하였으나 마손도 부분에서는 기준에 미치지 못하는 것을 확인하였다. 그러나 마손도를 향상시킬 수 있는 첨가제의 종류가 다양하므로 개선이 가능하다고 판단된다. 모의 시료를 단발타정기에서 타정한 결과는 Table 1과 같다. 울진 2발전소 실폐기물을 첨가제(Kollidon VA 64, Mecellose : EMA-70U)와 혼합(5 wt%, 10 wt%, 20 wt%)후 타정하여 6종류의 정제를 제작하였다. 타정한 정제를 1 m에서 낙하한 결과 6종류의 정제가 본래의 상태를 유지하였으나 2 m에서 낙하한 결과 정제가 큰 조각으로 분리되는 것을 확인하였다. 정제를 비이커에 넣고 흔든 경우 비이커에 분말이 묻어나는 것이 확인되었으나 1개월 정도 상온에서 보관한 정제를 비이커에 넣고 흔든 경우 분말이 묻어나지 않았다.

과립화 방식은 원자력발전기술원에서 개발한 과립화 설비를 이용하여 실험하였다. 과립화 설비는 제약, 세라믹 분야에서 고점도 물질의 혼합에 사용되는 장비로서 상부와 하부에 각각 모터가 장착되어 있어 각각의 모터 회전수를 조절할 수 있다. 설비 내부에서 혼합과 과립제조가 이루어지며, 상판의 구멍을 통해 내부에서 과립이 제조되는 상태를 확인할 수 있는 장점이 있다. 실린더에 의해 상판이 상하로 작동하여 개폐되고 상부모터는 혼합봉을, 하부모터는 혼합용기를 회전시켜 보통 0.5~11.2 mm 크기의 과립을 생성시킨다. 모의 시료의 과립화 실험결과 제조된 과립은 균질한 구형으로 무난하였으나, 강도가 약하여

1 m 낙하시험 시 작은 입자로 깨져 내구성이 떨어졌고 2 mm 이상 과립 생성률이 20.9~45.3 wt% 정도로 낮다는 문제점이 확인되었다. 과립화 시험결과는 Table 2와 같다.

Table 1. 단발타정기를 이용한 타정결과

모의시료 (%)	결합제 (%)	경도 (kp)	마손도 (%)	비 고
92	8(Kollidon VA 64)	5.0	2.8	
91	8(Kollidon VA 64) 1(HPMC)	5.0	2.9	
70	4(Kollidon VA 64) 25.5(Ludipress LCE) 0.5(Glyceryl Distearate)	7.6	1.2	
50	49.5(Ludipress LCE) 0.5(Glyceryl Distearate)	8.7	1.6	모서리 마모

Table 2. 과립 생성률

입자크기 (mm)	과립화제 혼합률 (wt%)		
	23	30	40
5 이상	17.3	3.6	15.8
4.00	4.3	2.6	4.5
3.35	3.4	2.9	4.4
2.80	2.0	2.5	4.2
2.00	6.7	9.3	16.4
2.00 이하	66.3	79.1	54.7
합계	100	100	100

사출방식 적용여부를 검토하기 위해 모의 시료를 이용하여 실험하였다. 모의 시료에 PVA 5 wt% 를 혼합 후 반죽을 제조하였다. PVA 분말을 물에 일정량 풀어 뜨겁게 가열해 주면서 계속 저어주면 풀과 같이 점성이 있는 용액이 된다. 이 PVA 수용액을 시료와 섞어주어 반죽을 만들게 되는데 시료 중 일부 성분이 PVA와 결합하지 못하고 상분리가 일어났다. 즉, 시료의 일부는 큰 덩어리로 뭉쳐지는 반면 일부 성분은 뭉치지 못하고 용액상에 그대로 남아 있었다. 사출방식은 시료의 화학적 특성이 공정과 사출물의 특성에 큰 영향을 미치기 때문에 시료의 성분이나 그 함량이 균질하지 않은 경우에는 적용하기가 어렵다. 또한, 공정의 특성상 사출기를 사용한 후에는 체 및 이송배관이 막힐 수 있으므로 기기를 분해하여 세정하는 작업이 반드시 필요하다는 단점이 있어 현장에 적용하기가 어렵다.

3. 결론

세가지 전처리 방법에 대한 실험 및 검토 결과는 Table 3과 같다. 따라서 봉산농축폐액 건조분말 및 모의 시료를 정제로 제작한 결과 적합한 첨가제(결합제, 윤활제)를 혼합하거나 일정기간 상온에서 보관하는 방법으로 마손도를 향상시킨다면 기기의 설치여건 및 유지보수, 운전 편의성에서 정제화 방식이 가장 적합한 전처리 방안인 것으로 판단된다.

Table 3. 전처리방안 검토 비교표

전처리 방법	최종 생성물	설치여건	유지보수	운전 편의성	세정
정제화 방식	양호	양호	양호	양호	불요
과립화 방식	부적절	보통	보통	보통	필요
사출방식	부적절	보통	어려움	어려움	필요

참고문헌

1. 양경화, “봉산농축폐액 특성조사 보고서”, 봉산농축폐액 유리화 타당성 연구, 원자력발전기술원, 대전 (2008).
2. 김길수 외 13명, 제제공학, pp. 71-73, pp. 121-172, 신일상사, 서울(2005).