

## 배기체 폐필터 유리화 타당성 연구

조현제, 김지연, 김천우

한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 금병로 508

cho@khnp.co.kr

### 1. 서론

한수원(주)에서는 1994년부터 유리화기술 개발을 시작하였다. 1999년에는 대전 원자력발전기술원내에 유리화실증시설을 건설하여 상용설비 설계 자료를 생산하였으며, 이를 바탕으로 2009년 울진 유리화설비를 준공하였다. 현재 울진 유리화설비는 안정적으로 운영 중에 있다. 울진 유리화설비에서 핵심 분야는 한수원(주)이 전 세계에서 최초로 상용화한 유도가열식 저온용융로(CCIM)이다.

유리화(vitrification)는 유리를 이루는 유리조성 구조속에 방사성물질들을 화학적으로 고정화(incorporation) 시키는 것으로 폐기물의 부피 저감뿐 아니라 생성 유리의 내침출성 효과가 큰 장점이 있다. 방사성폐기물을 안정적으로 유리화 하기 위해서는 대상폐기물의 물리·화학적 특성과 고온에서의 용융 특성을 상세히 분석할 필요가 있다. CCIM을 이용한 유리화에서는 폐기물을 최적으로 용융시키기 위한 조성유리 개발과 최적의 용융유리 점도 확보가 중요하다.

본 연구에서는 파이로프로세싱의 전처리 공정에서 발생하는 배기체 폐필터를 CCIM에서 유리화하기 위한 유리조성 개발과 온도대별 점도분석을 통해 견고한 유리고화체 생성과 안정적 운영 방안을 도출하고자 하였다.

### 2. 본론

#### 2.1 유리화 대상폐기물

본 연구에 사용된 파이로프로세싱 전처리에서 발생된 배기체 폐필터는 비산재(fly ash) 필터, Ca 필터, AgX 필터로 이루어져 있다. 비산재 필터의 경우 주요 구성성분은  $Al_2O_3$ 와  $SiO_2$ 가 90 wt% 이상, Ca/AgX 필터의 경우  $Al_2O_3$ 와  $SiO_2$ 가 70 wt% 이상 분포되어 있다.

#### 2.2 유리조성 개발

폐필터의 유리화용 유리조성 개발에 첨가제로  $B_2O_3$ ,  $Na_2O$  등을 이용하여 최적의 유리조성과 일정 온도영역에서 적절한 점도 분포를 이루도록 하였다. 유리조성 A는 fly ash 필터 유리화를 위한 유리조성이고 유리조성 B는 Ca/AgX 혼합필터를 유리화하기 위한 유리조성이다. 유리조성 개발을 위해 컴퓨터 프로그램 GlassForm 1.1[1]을 이용하였으며 주요조성은 A의 경우 대부분  $SiO_2$ 에  $Al_2O_3$  및  $Na_2O$ 로 구성되어 있고, B의 경우 대부분  $B_2O_3$ 에  $SiO_2$  및  $Al_2O_3$ 로 구성되어 있다. 유리조성 2종에 대한 물리·화학적 평가결과를 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Physicochemical Characteristics of Glasses A & B

Physicochemical Factor	Glasses		
	A	B	
Waste Loading(%) @1,150°C	70	50	
Viscosity(poise) @1,150°C	24	13	
E. Conductivity(S/cm) @1,150°C	0.9	17	
Density(g/cm <sup>3</sup> )	2.5	2.8	
7-Day PCT (g/m <sup>2</sup> )	pH	11.9	10.7
	B	0.7	0.1
	Li	0.7	0.1
	Na	0.8	0.1
	Si	0.3	0.1

Table 1에서 보는 바와 같이, 유리 2종의 침출률(Product Consistency Test : PCT)을 계산한 결과 유리고화체의 주요 원소들의 침출률은 기준치인 2 g/m<sup>2</sup> 이하를 만족하는 것으로 확인되어 화학적인 내구성은 우수한 것으로 평가되었다.

#### 2.3 유리제조

폐필터 유리화에서 CCIM을 이용한 1,150 °C 환경에서 고품질의 최종 유리고화체를 생성할 수 있는지를 평가하기 위해, 먼저 폐기물을 첨가제들과 혼합한 후 고온전기로를 이용하여 용융하였다. 그런 후 생성된 유리고화체를 이용하여 유리점도 및 압축강도 측정을 준비하였다.

### 2.4 유리 점도 측정

유리 2종의 점도 측정을 위하여 독일 HAKKE사의 점도 측정계(RotoVisco RV2)를 사용하여 950~1,250 °C에서 측정하였다. 측정값은 Vogel - Fulcher - Tammann 식( $\ln\eta=A/(T-T_0)+B$ )을 이용하여 유리의 점도 측정값을 환산하였다. Figure 1에서 보는 바와 같이 Fly ash 유리의 경우 1,100 °C 이상에서 Ca/AgX 유리의 경우 1,000 °C 이상에서 점도의 상한치인 100 poise 이하를 만족하는 것으로 분석되었다. 두 유리조성 모두 CCIM 운전온도인 1,150°C에서 측정치와 계산치 점도가 잘 일치 하는 것으로 평가되었다.

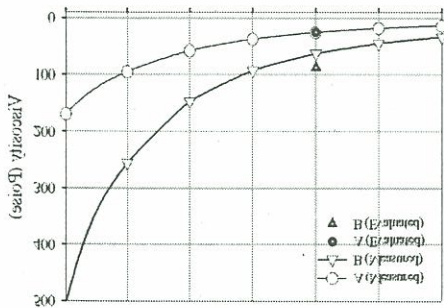


Fig. 1. Viscosity Distribution for Glasses of Spent Filters

### 2.5 유리 압축강도 측정

유리고화체 시편의 압축강도 측정을 위하여 유리조성 A를 흑연몰드에 부은 후 500 °C로 미리 예열된 오븐에 넣어 서서히 냉각시켰다. 유리고화체의 시편모양은 Figure 2와 같다. ASTM C39 측정방법에 의해 봉(cylinder) 형태로 제조된 시료의 직경(2.58 cm)과 높이(5.48 cm)의 비는 1대 2.12가 되도록 하였으며 시험속도는 367.09 kgf/min로 하였다. 압축강도 측정기(DTU-900HC, Daekyung Tech & Tester Mfg., Co., Ltd.)는 국내에서 제작된 제품을 사용하였다. 유리고화체의 압축강도 측정결과 기준치인 500 psi를 훨씬 초과하는 13,000 psi 값을 나타냈다. 따라서 유리 고화체의 기계적 강도는 매우 우수한 것으로 나타났다.

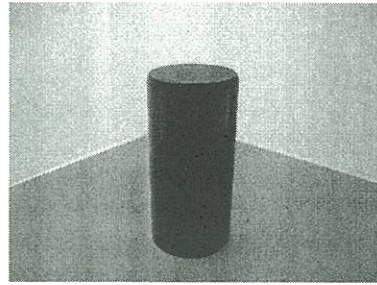


Fig. 2. Specimen of Glass Form used in Compressive Strength

### 3. 결론

파이로프로세싱 전처리 공정에서 발생하는 3종의 폐필터에 대한 유리조성 개발 및 유리화 방안을 도출하였다. Fly ash 필터는 70 wt%까지, Ca/AgX 혼합필터는 50 wt%까지 waste loading이 가능한 것으로 평가되었다. 개발된 2종의 유리 조성은 화학적 내구성이 우수한 것으로 평가되었으며, 점도 및 압축강도 결과도 매우 우수한 것으로 평가되었다. 본 연구결과는 향후 국내에서 추진 하고자 하는 공학규모 파이로 실증시설의 인허가 기본 자료로 활용될 예정이다.

### 4. 감사의 글

본 연구는 한국원자력연구원 수탁과제로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

### 5. 참고문헌

- [1] K. Vinjamuri, S.T. Wood and L.O. Nelson, GLASSFORM-Version 1.1:An Algorithm for Generating Preliminary Glass Formulations for Waste Streams,INEEL/EXT - 98 - 00269, August (2000).