Journal of the Korean Ceramic Society
Vol. 39, No. 6, pp. 576~581, 2002.

유도 가열식 저온용융로를 이용한 방사성폐기물 유리화: 유리 고화체 특성

김천우† · 박은정 · 최종락 · 지평국 · 최관식 · 맹성준 · 박종길 · 신상운 · 송명재
한국수력원자력(주) 원자력환경기술원
(2002년 4월 19일 접수; 2002년 5월 22일 승인)

Radioactive Wastes Vitrification Using Induction Cold Crucible Melter: Characteristics of Vitrified Form

Cheon-Woo Kim†, Eun Jung Park, Jong Rak Choi, Pyung Kook Ji, Kwansik Choi, Sung-Jun Maeng, Jong-Kil Park, Sang-Woon Shin and Myung-Jae Song
Nuclear Environment Technology Institute, Korea Hydro & Nuclear Power Co., LTD, Daejon 305-600, Korea
(Received April 19, 2002; Accepted May 22, 2002)

초 록

원자력발전소에서 발생하는 이온교환수지와 잡고체를 동시에 처리하기 위하여 유도 가열식 저온용융로를 이용한 유리화 실증시험을 수행하였다. 유리 고화체의 화학적 내구성을 평가하기 위하여 최종 유리에 대해 수행한 PCT 침출 시험결과 기준유리 보다 내 침출성이 우수한 것으로 나타났다. 최종 유리 고화체에 대해 열처리 실험 결과 액상온도는 1048 K (775°C)로 측정되었다. 유리 고화체에 대한 압축강도 측정 결과 규제치인 34 kg/cm^2 보다 약 90배 높은 값을 나타내었다. 저온용융로(CCM)의 하부, 중앙, 상부 유리 고화체의 미세구조 관찰 결과 이차상 없는 균질한 상태였다. 환원성 유기물을 함유한 이온교환수지에 잡고체를 동시 투입하여 자성 금속상 침전을 방지할 수 있었다. 유리화 실증시험을 통하여 감용비 74를 달성하였다.

ABSTRACT

In order to simultaneously vitrify the Ion Exchange Resin(IER) and Dry Active Waste(DAW) generated from the Nuclear Power Plants, a vitrification pilot test was conducted using an induction cold crucible melter. The PCT result evaluating the chemical durability of the vitrified form showed that the final glass was more durable than the benchmark glass. Liquidus temperature for the final vitrified form was 1048 K(775°C) for heat treatment experiments. The value of the compressive strength for the vitrified form was ninety times higher than the regulation limit, 34 kg/cm^2. The glasses on bottom, middle and top of the CCM were homogeneous with no secondary phase. The precipitation of the magnetic metal phase was able to be avoided by simultaneously feeding of DAW with IER containing strongly reducing organics. Volume reduction factor of 74 was achieved through the vitrification pilot test for mixed waste.

Key words **: *Vitrification, DAW, IER, PCT, Compressive strength***

1. 서 론

원자력발전소에서 발생되는 중·저준위 방사성폐기물(low- and intermediate-level radioactive waste)을 물리·화학적으로 보다 안정하게 처리해야할 여러 처리기술 중에서 유리화(vitrification)가 가장 유망한 기술로 선정되었다.[1,2] 한국수력원자력(주)의 원자력환경기술원은 이온교환수지(Ion Exchange Resin, IER), 잡고체(Dry Active Waste, DAW) 등의 가연성 방사성폐기물을 처리할 수 있는 파일럿 규모 유도 가열식 저온용융로(Cold Crucible Melter, CCM) 유리화 시설을 설치하고 연구를 수행하고 있다.[3,4] 그 동안 여러 실증시험에서 결정된 최적의 운전조건 및 방법을 적용하여 이온교환수지와 잡고체 투입비율은 1 : 2로 하였으며 약 74정도의 감용비를 달성할 수 있는 시험조건에서 혼합폐기물을 92시간 동안 용융 유리 표면위로 동시에 투입하였다. 초기 유리 용탕을 원활하게 만들고 혼합폐기물이 투입되는 동안 유리용탕의 건전성을 유지하기 위하여 자체 개발한 네 가지 유리 첨가제를 적절하게 투입하였으며 혼합폐기물이 투입되고 있는 중간에 배출한 유리고화체와 최종 유리고화체의 침출특성, 압축강도, 미세구조 등의 물리·화학적 특성을 분석하고 평가하였다.

†Corresponding author : Cheon-Woo Kim
E-mail : cheonkim@khnp.co.kr
Tel : +82-42-870-0343 Fax : +82-42-870-0354

Table 1. Glass Frits Used for Start-up and Additives

	Electrical conductivity* (S/cm)	Viscosity* (dPa · s)	Remarks
NE/CE	0.30	154	Ignition
MG-Li	1.59	12	Additive
FM	0.28	79	Additive
CE	0.20	52	Additive
NE	0.45	453	Additive

*at 1423 K(1150°C)

2. 실험방법

2.1. 유리 첨가제 선정

실증시험에 사용한 유리첨가제들은 폐기물 투입 전에 유리 용탕을 만들기 위해 사용한 것과 폐기물이 투입되는 과정에서 원활한 유리 용탕 유지와 물리·화학적 견고성을 유지하기 위하여 사용한 네 종류가 있다. 실증시험에 사용한 유리의 물리적 특성을 Table 1에 나타냈다. 다성분 붕규산 유리계의 물리·화학적 특성을 예측하기 위해 실험실적 자료를 근거로 개발한 전산 프로그램 GlassForm 1.1[5]으로 산출한 점도는 유리의 용융, 혼합, 배출시 중요한 운전변수이며 또한, 유리의 전기 전도도는 초기점화, 연속적인 용탕 유지, 고주파발생기로 부터의 출력 조절을 위한 주요 변수이다. 일반적으로 운전 온도에서 유리의 점도는 10~100 dPa·s이고 전기 전도도는 0.2~0.6 S/cm가 가장 적절한 값으로 알려져 있다.[6-9]

2.2. 시료채취

이온교환수지와 잡고체 혼합폐기물이 투입되기 전 유리를 배출하고 D01과 D02 두 개 유리 시료를 채취하였다. 혼합폐기물을 투입하면서 총 네 개(D03~D06) 유리 시료를 채취하였으며 시험 종료 후 CCM의 상, 중, 하부 유리 고화체 시료와 meniscus 유리 및 이차상(secondary phase) 시료를 채취하였다.

2.3. 화학적특성 분석

TCLP(Toxicity Characteristic Leaching Procedure)[10] 결과는 유리 고화체를 최종 처분한 후 고화체가 물과 접촉했을 때 고화체의 안정성을 나타내는 가장 중요한 지표가 된다. 최종 처분장에서 유리 고화체가 직면할 수 있는 위험은 물과의 접촉으로 인한 방사성물질과 중금속과 같은 유해물질의 유출인데, TCLP 시험은 그 상황을 상당히 보수적으로 미리 고려한 시뮬레이션으로 볼 수 있다. TCLP 시험법은 9.5 mm체(sieve)를 통과한 고체상 시료에 대해 수행하도록 규정하고 있다. 침출액은 초산(acetic acid)과 1 N 수산화나트륨용액(NaOH)으로 제조하는 pH 4.93±0.05의 침출액 #1과 초산(acetic acid)으로만 제조하는 pH 2.88±0.05의 침출액 #2를 규정하고 있다. 유리시료 중 5 g을 취해 500 ml 비이커에 담고 탈이온수 96.5 ml를 넣어 5분간 교반 후 pH를 측정하였다. pH가 5.0 이하면 pH 4.93±0.05의 침출액을 사용하고 pH가 5.0 이상이면 pH 2.88±0.05의 침출액을 사용하였다. 시료 무게의 20배에 해당하는 침출액과 시료를 용기에 넣고 밀폐하여 295±276 K(22±3°C)의 온도에서 30±2 rpm으로 18±2시간 동안 회전 교반기로 섞어주고 침출액은 유리 섬유필터로 거른 후 거른 용액에 HNO_3를 첨가하여 pH를 2 이하로 만들어 분석하였다.

유리의 화학적인 견고성 시험으로서 PCT(Product Consistency Test)[11]는 7일 동안 유리 고화체 내의 Na, B, Li, Si의 침출 거동을 기준(benchmark) 유리의 침출 거동과 비교하는 시험이다. 기준유리는 미국 Savannah River 연구소에서 제조한 EA(Environmental Assessment) 유리를 사용하였다. PCT를 수행하기 위해 149 μm(100 mesh)을 통과하고 74 μm(200 mesh) 위에 걸러진 유리 10 g 정도를 취한 다음 스테인레스강(SUS 304L) 용기에 넣고 유리의 10배에 해당하는 ASTM Type I 탈이온수를 채운다음 밀봉하였다. 이 경우 유리의 표면적과 침출수의 체적비(SA/V)는 2000 m^{-1}이다. 미리 363 K(90°C)로 예열된 오븐에 넣고 7일이 지난 후 꺼내어 침출수 중 1 ml를 취해 1% HNO_3 20 ml 용액이 담긴 vial에 담아 유리 고화체로부터 침출되어 나온 Na, B, Li, Si의 침출률을 SRL-EA 기준 유리의 침출률과 비교하였다. 또한, 남아있는 침출수를 취해 pH를 측정하였다.

2.4. 물리적 특성 분석

유리 고화체의 액상온도 측정 및 결정 생성 거동을 확인하기 위하여 열처리(heat treatment) 실험을 수행하였다. 사용한 실험 기기로는 시간에 따라 온도조절이 가능한 고온 전기로와 유리시료를 담고 있을 10 ml 용량의 백금(95%)/금(5%) 도가니를 사용하였다. 이 실험은 냉각과정에서 발생할 수도 있는 유리 속의 결정핵 생성여부를 살펴보기 위해 1423 K(1150°C)에서부터 25 K(25°C)씩 온도를 낮춰가면서 일정한 온도에서 20시간 열처리를 하는 것이다.[12] 열처리된 온도에서의 유리형상을 그대로 보존하기 위하여 시료를 담은 도가니를 물에 급냉 하였으며 SEM(JSM-5600, JEOL Ltd.)/EDS(INCA Energy, Oxford Instruments)를 사용하여 결정 생성여부를 분석하였다.

유리 시료의 압축강도 측정을 위하여 CCM에서 배출된 유리를 고온전기로에서 다시 용융시켜 흑연 mold에 부은 후 873 K(600°C)로 미리 예열된 오븐에 넣어 서서히 냉각시켰다. ASTM C39 측정방법[13]에 의해 봉(cylinder) 형태로 제조된 시료의 직경과 높이의 비는 1대 1.8~2.2 사이가 되도록 하였으며 재하속도는 1.5~3.5 kg/cm^2·s로 하였다. 압축강도 측정기(DTU-900HC, Daekyung Tech &

Tester Mfg., Co., Ltd.)는 국내에서 제작된 제품을 사용하였다.

2.5. SEM/EDS를 이용한 유리 균질성 및 이차상 분석

유리 고화체의 균질성과 이차상의 미세구조 및 성분을 분석하기 위하여 SEM/EDS를 사용하였다. SEM/EDS 분석을 위해 채취된 시료는 직경 1~2 cm 이내로 절단된 다음 epoxy resin으로 mounting하여 표면연마기(polisher)에서 분석대상표면이 연마되었다. 표면이 고르게 연마된 시료를 진공상태에서 탄소로 코팅하여 전기적으로 전도성을 갖도록 한 후 분석하였다.[14]

2.6. 성분분석

유리 고화체 내에 존재하는 주요성분들의 정량분석을 위해 사용하는 ICP-AES(OPTIMA 3300DV, Perkin Elmer) 방법은 라디오파 코일 속으로 아르곤(Ar) 가스를 통과시켜 발생시킨 아르곤 플라즈마를 사용하여 시료 원소들을 여기 시켜 분석하는 방법이다. 분석을 위한 시료의 전처리 방법으로는 MD(Microwave Digestion)를 사용하였으며 시료를 용융 상태로 만든 다음 아르곤 플라즈마에 주입하였고 각 원소들이 여기될 때 나오는 고유 파장으로 정량 분석하였다.[15]

3. 결과 및 고찰

3.1. Bulk 및 Meniscus 유리

CCM의 상부챔버를 분해한 후 확인한 용융 상태였을 때의 유리높이 흔적은 약 16 cm이었으며 유리표면 상부로부터 CCM 벽면을 따라 붙어있는 meniscus 유리 높이는 약 6 cm였다. 이는 유리용탕이 약 6 cm 정도 swelling 되었음을 나타내준다.[16] 육안으로 확인한 CCM의 상, 중, 하부 유리 고화체는 모두 균질한 상태였다. 중앙 버블러 주변 CCM 바닥면의 skull(autocrucible) 유리 두께는 약 3~4 mm 정도였고 나머지 영역 두께는 2 mm 정도로 CCM의 벽면과 바닥부분에 피복되어 있었다. Meniscus 유리 내부에서 소량의 sulfide 결정상과 외부에서 sulfate 결정상이 관찰되었다. 유리 고화체를 비롯한 이들 이차상의 상세한 미세구조관찰 내용은 본고 3.4.절의 SEM/EDS 분석부분에 나열하였다.

3.2. 유리 고화체의 화학적 특성

혼합폐기물 투입 후 첫 번째 배출유리인 D03부터 네 번째 배출유리인 D06 시료에 대해 TCLP 실험을 수행한 후 침출액의 실험 전·후의 pH 변화를 측정하여 Table 2에 정리하였다. 네 개 유리시료 모두 침출액의 pH는 증가하였다. 일반적으로 TCLP 침출액의 pH 증가는 유리속의 알칼리 원소나 알칼리 토금속 원소의 침출 때문에 일어난다.[17] 이온교환수지 후보유리(RG-1), 잡고체 후보유리(DG-1), CVCS IER과 잡고체를 혼합하여 처리하는 후보유리(MG-1)의 경우 최종 TCLP pH는 4.95 이하였고 기준유리(SRL-EA)인 경우 최종 TCLP pH는 4.96이었다.[18] TCLP 실험의 pH 변화로 평가한 본 실증시험으로부터 발생한 네 가지 유리시료들의 화학적 견고성은 앞에서 언급한 유리 고화체들 보다 상대적으로 낮음을 알 수 있었다. 그러나, 최종 유리 고화체인 BULK 시료에 대해 7일 동안 PCT 시험을 수행한 결과 SRL-EA 기준유리에 비해 내침출성이 양호한 것으로 평가되었다. Table 3은 7일 PCT 결과를 보여주고 있으며 Fig. 1은 7일 PCT 결과를 기준유리와 비교하기 위하여 그림으로 나타낸 것이다. 유리 고화체내에 존재하는 Si, Na, B, Li 원소에 대한 침출률은 네 원소 모두 0.5 g/m^2 이하임을 알 수 있었다. Si의 경우 기준유리의 약 27%, Na의 경우 약 6%, B의 경우 약 5%, Li의 경우 약 6% 정도의 침출률을 보였다. 유리 고

Table 2. TCLP pH Variations for Drained Glasses

Glass ID	Contents of glass	TCLP pH	
		Before	After
D03	1st drained glass after waste feeding	4.89	5.28
D04	2nd drained glass after waste feeding	4.90	5.36
D05	3rd drained glass after waste feeding	4.91	5.34
D06	4th drained glass after waste feeding	4.92	5.31

Table 3. Result of 7-day PCT for BULK

Elements \ Glass ID	BULK (g/m^2)	SRL-EA (g/m^2)
Si	0.12	2.24
Na	0.47	7.43
B	0.48	9.94
Li	0.29	4.93

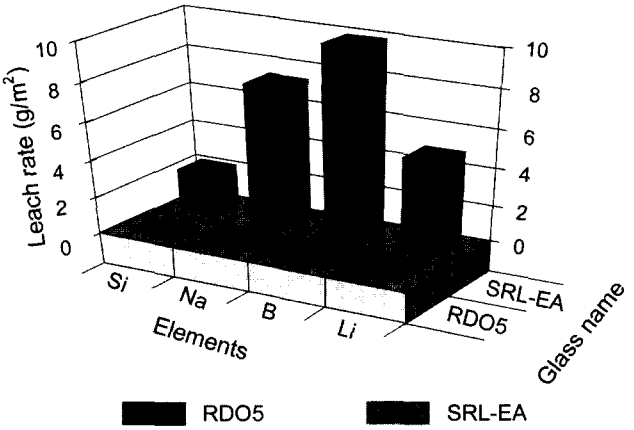


Fig. 1. Result of 7-day PCT for BULK (RDO5) compared with benchmark glass (SRL-EA).

화체를 363 K(90°C) 환경에서 7일 동안 침출시킨 후 측정한 기준유리(SRL-EA)의 pH는 13.3이였으며 최종 유리 고화체(BULK)의 경우 12.8로 기준유리보다 pH 변화가 적었다. 이는 기준유리보다 원소들의 침출이 적어 침출액의 pH 변화에 많은 영향을 주지 않았음을 보여준다.

3.3. 유리 고화체의 물리적 특성

혼합폐기물 유리 고화체의 액상온도[19]를 측정하고 또한, 열처리과정에서 생성되는 결정을 평가하기 위하여 최종 유리 고화체(BULK)에 대해 25 K(25°C) 단위로 20시간 열처리 실험을 수행한 결과 1023 K(750°C)부터 결정이 생성됨을 알 수 있었다. 고화체내 결정은 glass/air 또는 glass/crucible 경계에서 생성되는 heterogeneous 결정생성 메커니즘을 보여 주었으며 생성 결정의 EDS 분석결과 Al이 대부분이며 소량의 Si가 함유되어 있는 것으로 나타났다. 20시간 열처리 실험결과 결정이 생성되지 않은 최저 온도를 유리의 액상온도로 정의하는데 이 실험결과 혼합폐기물 유리는 1048 K(775°C)가 액상온도 임을 알 수 있었다.

유리 고화체의 압축강도 측정결과는 Table 4에 나타나 있듯이 폐기물 투입 후 첫 번째 배출한 유리인 D03의 경우 3316 kg/cm^{2}이며 최종 유리 고화체의 경우 3208 kg/cm^{2}로 미국에서 시멘트 고화 매질에 대해 요구하는 규제치[20] 34 kg/cm^2(500 psi) 이상을 훨씬 초과하는 매우 양호한 결과를 나타냈다. 또한, 혼합폐기물 유리 고화체의 압축강도는 Joule Heated Ceramic Melter(JHCM)에서 발생되는 유리 고화체의 압축강도 보다 다소 높은 것으로 나타났으며 In-Situ Vitrification(ISV)에서 발생하는 유리 고화체의 압축강도 범위 안에 있음을 알 수 있었다.[21] 혼합폐기물 유리 고화체의 압축강도는 콘크리트의 압축강도 보다 최소 6배에서 최고 16배까지 높은 것으로 평가되었다.

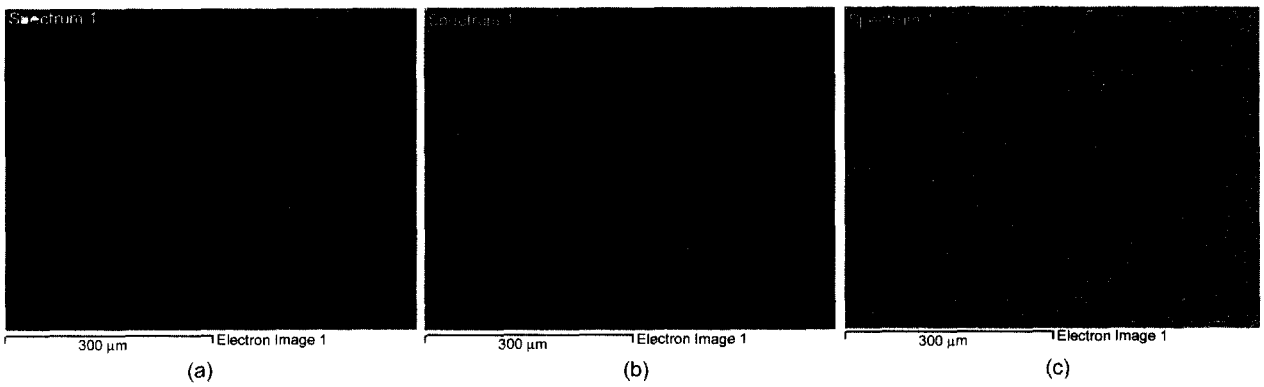
3.4. SEM/EDS 분석

CCM의 5시와 7시 방향 사이에 있는 6시 방향 영역의 meniscus 유리 층 안팎에서 sulfate 결정상이 발견되었으며 6시 방향 CCM wall/meniscus 유리 경계에서 약 2 mm 두께의 엷은 노란색과 흰색 혼합 물질에 대한 EDS 분석결과 sodium-sulfate에 소량의 Cl, K, Ca, Cs, Cr, Fe이 함유되어 있음을 알 수 있었다. Sulfate 결정상이 노란색을 보일 경우에는 일반적으로 chromate나 molybdate가 함유된 경우로 알려져 있다.[22,23] 그러므로 본 실증시험에서 발견된 노란색 sulfate 결정상의 경우는 분석결과에서 나타난 chromate 함유로 볼 수 있다. 6시 방향 meniscus/air 경계에서 채취된 약 3 mm 두께의 흰색 물질에는 sodium-sulfate에 소량의 K, Ca가 함유되어 있었으며 나머지 영역의 CCM/meniscus 유리 경계 층에서는 sulfate 결정이 비교적 소량으로 생성되었고 2시 방향과 9시 방향의 CCM/meniscus 경계에서는 극미량 생성되었다.

CCM 상, 중, 하부의 유리 고화체 균질성 및 화학적 조성 분포를 관찰하기 위하여 SEM/EDS 분석을 수행하였으며 Fig. 2의 SEM micrograph에 나타난 바와 같이 이차상 없는 균질한 상태로 나타났다. EDS 분석에 의한 유리 고화체 주요 구성 성분인 Al_2O_3, Na_2O, SiO_2 함량은 CCM 상, 중, 하부유리에서 동일한 농도로 나타났다. 미량 성분 함유되어 있는 Ca, Ti, Fe의 농도도 CCM의 상, 중, 하부유리에서 모두 동일하였으나 단지 S의 농도는 CCM 하부에서 중앙으로 갈수록 감소하는 경향을 나타내었고 상부유

Table 4. Result of Compressive Strength Experiment

Glass ID	Diameter (mm)	Height (mm)	Area (cm^2)	Max. load (kg)	Compressive strength kg/cm^2 (psi)	Remarks
D03	29.75	55.98	6.948	23,040	3,316 (48,747)	Regulation limit: 34 kg/cm^2 (500 psi)
BULK	29.72	55.95	6.934	22,245	3,208 (47,159)	



(a) (b) (c)

Fig. 2. SEM micrographs of bottom, middle and top glass of the CCM (a) CCM bottom, (b) CCM middle, (C) CCM top.

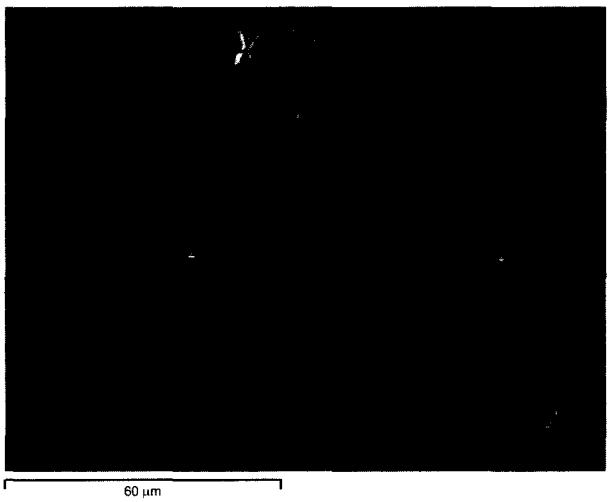


Fig. 3. SEM micrograph of sulfide phase.

리에서는 분석되지 않았다. 이는 폐기물이 접촉하지 않은 영역인 CCM 하부는 상부보다 산화조건이므로 S가 SO_3 형태로 유리 matrix내에 incorporation 되나 폐기물 접촉이 있는 CCM 상부는 환원조건으로 인해 S가 SO_2 gas로 대부분 발생하였거나 sulfide 결정상을 형성한 것으로 볼 수 있다.[24]

CCM 전 영역에 걸쳐서 자성 금속상은 발견되지 않았으나 소량의 sulfide 결정상이 일부 영역에서 발견되었다. Sulfide 결정상에 대한 EDS 분석 결과 Fe, Co, Ni sulfide 결정 화합물로 분석되었다. Fig. 3의 SEM micrograph는 두 개의 sulfide 상이 물리적으로 결합된 상태를 보여주고 있다. Micrograph에서 밝은 부분을 EDS로 분석한 결과 Ni와 S 두 원소로 구성되어 있었으며 Ni와 S의 atomic%가 대략 3대 2를 이루고 있는 Ni_3S_2 결정상이고 어두운 부분의 EDS 결과는 Fe, Co, Ni과 S가 혼합된 상이었다. Fe, Co, Ni 세 원소 합계의 atomic%와 S의 atomic%는 대략 1대 1을 이루고 있으므로 이 상은 (Fe, Co, Ni)S 구조를 이루고 있는 결정상임을 알 수 있었다.[25]

Sulfide 결정상의 생성 메커니즘과 특성은 다음과 같다. 환원조건에서 sulfide(S^{2-})는 주기율표상의 3d 전이금속들 중 환원 잠재력이 높은 이온들(reduction potential order: Ni > Co > Fe > Cu > Zn 등)[26]과 주로 결합하여 sulfide 결정상을 형성하게 되는데 일반적으로 유리화 과정에서 발생하는 sulfide 결정상의 특성들은 다음과 같다. 결합하는 전이금속의 종류에 따라 다르지만 Ni_3S_2 경우 1060 K (787°C) 이하에서 고체상태로 그 이상에서는 용융 상태로 존재하며 NiS, CoS, FeS의 경우는 각각 1249 K(976°C), 1455 K(1182°C), 1461 K(1188°C) 이하에서 고체 상태로 존재하게 된다. 혼합폐기물 유리화 과정에서 나타나는 sulfide 상은 Ni, Co, Fe 등이 혼합된 상태이므로 이를 고온전기로 내에서 용융 시켜 대략적인 용융점을 측정하였다. 측정결과 973 K(700°C)에서 sulfide 결정상은 용융 되지 않았으나 1073 K(800°C)에서는 용융됨을 알 수 있었다. Sulfide 결정상이 침전되는 산소압은 1423 K(1150°C) 붕규산 유리계에서 $10^{-8.5}$ atm 이하에서 부터이며 Fe의 지시계로 2가와 3가 합산기준에서 약 6% 이상 2가 철이 존재하면 sulfide 결정이 형성되는 것으로 알려져 있다.[27]

3.5. 감용비

방사성폐기물을 유리 고화체로 만들어 얻을 수 있는 가장 큰 효과 중 하나는 높은 감용비(volume reduction factor)를 얻는 것이다.[28] 본 유리화 실증시험에서 얻은 감용비는 유리화 공정에서 사용한 혼합폐기물의 부피를 발생한 유리의 부피로 나눈 값이다. 실증시험에 사용한 총 이온교환수지량은 368 kg이며 이를 이온교환수지의 밀도 약 0.72×10^3 kg/m^{3}로 나누면 약 0.511 m^{3}가 되고 잡고체의 총 사용량은 751 kg이므로 이를 잡고체의 밀도 약 0.2×10^3 kg/m^{3}로 나누면 3.755 m^{3}가 된다. 따라서 실증시험에 사용한 혼합폐기물의 총 부피는 4.266 m^{3}이다. 혼합폐기물이 CCM에 투입되고 나서 시험 중에 배출한 유리 63 kg과 혼합폐기물 투입이 종료되고 나서 남은 CCM 내의 최종 유리인 83 kg의 합인 146 kg의 부피 계산을 위해 최종 유리의 밀도인 2.53×10^3 kg/m^{3}으로 계산하면 0.058 m^3 유리부피가 산출된다. 그러므로 감용비는 사용한 혼합폐기물의 총 부피인 4.266 m^{3}를 총 유리의 부피 0.058 m^{3}로 나누면 약 74가 된다.

4. 결 론

혼합폐기물 유리화를 통하여 발생한 유리 고화체의 화학적 내구성을 평가하기 위하여 수행한 PCT 침출 시험 결과 기준유리(SRL-EA) 보다 내 침출성이 우수한 것으로 나타났다. 유리 matrix에 결정이 생성되지 않도록 운전 중에 유지해 주어야 할 유리 용탕의 최저온도를 분석하기 위해 최종유리에 대해 열처리 실험을 수행한 결과 액상 온도는 1048 K(775°C)로서 CCM을 이용하여 유리화 하는데 안정적인 온도임을 알 수 있었다. 초기 배출 유리와 최종 유리 고화체에 대해 압축강도를 측정한 결과 고화체 폐기물에 적용하는 압축강도 규제치인 34 kg/cm^2(500 psi) 보다 약 90배 높은 압축강도를 나타내어 물리적으로 안정적인 물질임을 알 수 있었다. CCM의 하부, 중앙, 상부 유리 고화체에 대해 미세구조를 관찰한 결과 유리 고화체는 이차상이 없고 황(S)을 제외한 나머지 유리 구성 성분간 농도 차이가 없는 균질한 상태였다. 이온교환수지에 잡고체를 혼합 투입함으로 일반적으로 이온교환수지 단독 유리화시 발생하는 자성 금속상 침전은 방지할 수 있었다. 유리화를 이용한 혼합폐기물의 감용비는 74로 다른 고화처리 방법을 이용할 경우 보다 높은 감용 효과를 얻는 것으로 평가되었다.

REFERENCES

1. KEPRI-KEPCO, A Feasibility Study on the Vitrification of Low-level Radioactive Waste, KEPRI-94Z-17, pp. 177-224 (1995).
2. C-W. Kim, B-C. Park, H-M. Kim, T-W. Kim, K. Choi, J-K. Park, S-W. Shin and M-J. Song, "Studies on the Physico-chemical Properties of Vitrified Forms of the Low-and Intermediate-level Radioactive Waste(*in Kor.*)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **38** [9] 839-45 (2001).
3. C-W. Kim, K. Choi, J-K. Park, S-W. Shin and M-J. Song, "Vitrification of Radioactive Waste: An Environmentally-friendly Treatment Technology," *Ceramist*, **3** [6] 55-66 (2000).
4. NETEC-KHNP, Development of Vitrification Technology Development for Low- and Intermediate-Level Radioactive Waste (II), TM.A00NJ01.M2001.11, pp. 3-7 (2001).
5. 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).
6. D. F. Bickford, A. Applewhite-Ramsey, C. M. Jantzen and K. G. Brown, "Control of Radioactive Waste Glass Melters: 1, Preliminary General Limits at Savannah River," *J. Am. Ceram. Soc.*, **73** [10] 2896-902 (1990).
7. L. A. Chick, J. L. Swanson and D. S. Goldman, "Nuclear Waste Glass Compositional Limitations," *Pacific Northwest Laboratory, Richland*, WA (1982).
8. M. J. Plodinec and J. R. Wiley, "Viscosity and Electrical Conductivity of Glass Melts as a Function of Waste Composition, Savannah River Laboratory," Aiken, SC (1979).
9. EPRI, Vitrification of Low-level Radioactive Waste, TR-105912, Research Project WO3500-29, January (1996).
10. US EPA, Method 1311 Toxicity Characteristic Leaching Procedure, *Federal Register*, **55** No.60 (1990).
11. C. M. Jantzen and N. E. Bibler, *Product Consitency Tests (PCT) Method Version 3.0*, WSRC-TR-90-539, Westinghouse Savannah River Laboratory, Aiken, SC (1989).
12. C-W. Kim, I. S. Muller, A. C. Buechele, I. L. Pegg and P. B. Macedo, "Redox State and Transition Metal Concentration Effects on Microstructure of Simulated Simplified Glasses for Waste Immobilization," *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XIX*, **412** 149-56 (1996).
13. ASTM C39, "Compressive Strength of Cylindrical Concrete Specimens," American Society for Testing and Materials (1979).
14. C-W. Kim, "Studies of the Properties of Multicomponent Waste Glasses Containing Transition Metal Oxides," Ph.D. Dissertation, The Catholic University of America, pp. 62-3 (1997).
15. D. A. Skoog and J. J. Leary, Principles of Instrumental Analysis, Saunders College Publishing (1992).
16. NETEC-KHNP, "Summary Report on the Long Duration Pilot Plant Test with Simulated Combustible Low- and Intermediate-level Radioactive Waste," TR.A00NJ01.M2001.12, pp. 19-24 (2001).
17. S-S. Kim, "Leach Study on the Simulated Nuclear Waste Glass for the High-level Radioactive Waste," Ph.D. Dissertation, Chungnam National University, pp. 6-25 (1997).
18. C-W. Kim, B-C. Park, H-M. Kim, T-W. Kim, K. Choi, J-K. Park, S-W. Shin and M-J. Song, "Studies on the Physico-Chemical Properties of Vitrified Forms of the Low- and Intermediate-level Radioactive Waste(*in Kor.*)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **38** [9] 839-45 (2001).
19. NETEC-KHNP, Development of Vitrification Technology Development for Low- and Intermediate-level Radioactive Waste (II), TM.A00NJ01.M2001.11, p. 124 (2001).
20. US NRC, Technical Position on Waste Form (1991).
21. US EPA, Vitrification Technologies for Treatment of Hazardous and Radioactive Waste, April (1992).
22. H. D. Schreiber, S. J. Kozak, P. G. Leonhard and K. K. McManus, "Sulfur Chemistry in a Borosilicate Melt: Part 1. Redox Equilibrium and Solubility," *Glastech. Ber.*, **60** [12] 389-98 (1987).
23. W. Lutze and R. C. Ewing, eds., Radioactive Waste Forms for the Future, North-holland, New York, pp. 31-4 (1988).
24. H. D. Schreiber, "Sulfur Chemistry in a Borosilicate Melt, Part I: Redox Equilibria and Solubility," Center for Glass Chemistry, Virginia Military Institute, Lexington, VA, January (1987).
25. http://www.webelements.com/webelements/elements/text/S/key.html.
26. H. D. Schreiber and M. T. Coolbaugh, "Solvations of Redox Ions in Glass-forming Silicate Melts," *J. Non-Cryst. Solids*, **181** 225-30 (1995).
27. H. D. Schreiber and A. L. Hockman, "Redox Chemistry in Candidate Glasses for Nuclear Waste Immobilization," *J. Am. Ceram. Soc.*, **70** [8] 591-94 (1987).
28. I. L. Pegg, "Development of the Minimum Additive Waste Stabilization(MAWS) Program for Fernald," *Ceram. Trans.*, **39** 13-22 (1994).