

## Comparative Evaluation of Various Standard Methods in Leaching Test of Radioactive Waste Form

방사성고화체로부터의  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  침출에 대한 표준시험법의 상호비교

**Ki-Hong Kim, Young-Geul Ryu, Kyung-Ki Chung, Kwon-Pyo Hong**

**Nak-Hee Lee, Heon Kim, Yi-Yeong Jeong, and Duck-Joon Koh\***

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

\*Korea Hydro & Nuclear Power Co. Ltd., 150 Duck-Jin Dong, Yusung-Ku, Daejeon

<nkhkim@kaeri.re.kr>

김기홍, 유영걸, 정경기, 홍권표

\*이락희, 정의영, 고덕준, 김현

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

\*한국수력원자력(주), 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

(Received December 1, 2003, Approved December 15, 2003)

### Abstract

IAEA, FT-04-020, and ANS 16.1, standard leaching test methods, were evaluated comparatively with their test results. Leaching index of  $^{60}\text{Co}$  and  $^{137}\text{Cs}$  by ANS 16.1 method for waste forms of paraffin and cement were above 6.0. Their leaching behavior were depending on the type of matrix and leachant. Leachability of  $^{60}\text{Co}$  for cement waste form was higher in simulated seawater than de-mineralized water, and was higher in de-mineralized water for paraffin waste form. Leachability of  $^{60}\text{Co}$  was contrary to  $^{137}\text{Cs}$ . Cumulative fraction leached of  $^{60}\text{Co}$  was higher in order of IAEA > ANS > FT in a cement waste form.

**Key words** : radioactive waste form, cement, paraffin, leaching test, IAEA Hefse' method, ANS 16.1. FT-04-020

### 요약

IAEA, FT-04-020 및 ANS 16.1의 침출시험법을 각각 수행하여 얻은 시험결과를 이용하여 상호 비교 평가하였다. 봉산을 함유한 파라핀 및 시멘트 고화체에서의  $^{60}\text{Co}$ 과  $^{137}\text{Cs}$ 의 ANS 16.1의 침출지수는 6이상이었으나 고화매질과 탈염수의 종류에 따라 상반되는 침출거동을 보였다. 침출수로 합성해수와 탈염수를 사용하였을 경우  $^{60}\text{Co}$ 는 시멘트 고화체에서는 합성해수, 파라핀 고화체에서는 탈염수에

서 침출이 높았다. 반면에  $^{137}\text{Cs}$ 의 침출정도는 시멘트에서는 탈염수, 파라핀에서는 합성해수에서 높았다.  $^{60}\text{Co}$ 의 침출분율은 시멘트 고화체에서 IAEA > ANS > FT의 순으로 높았으며, 반대로 파라핀 고화체에서는 이의 역순이었다.

**Key words** : 방사성 고화체, 시멘트, 파라핀, 침출시험, IAEA Hepse' method, ANS 16.1, FT-04-020

I. 서 론

방사성폐기물 고화체내에는 방사성핵종이 함유되어 있어 이로부터의 침출특성 규명은 고화체의 개발과 그의 특성규명, 폐기물관리시스템 선택을 위한 안전성 해석 및 폐기물 고정화 시설에 대한 품질보증 활동의 일부분으로 중요한 역할을 하게 된다. 침출시험 결과는 고화체의 품질보증과 실험실간 상호비교가 매우 중요한 사항이기 때문에 세계 각국에서는 많은 침출시험법들을 개발하여 각국의 실정에 부합되게 표준화하고 있다[1].

침출시험법은 크게 사용 목적, 침출수 교체 및 교반 유무에 따라 분류할 수 있는데 많은 시험법중에서 처분장 운영국가와 실험실에서 널리 이용되는 IAEA 시험방법[2]은 반무한고체 모델에 의해 확산 침출과정을 해석할 수 있는 시험법이다. 이 시험법은 시편상부의 한 단면만을 노출시키고 나머지 면은 시편 제조용기나 침출수의 침입을 차단할 수 있는 물질로 둘러싸게 하여 침출시험동안 고화체의 건전성을 유지할 수 있기 때문에 시멘트 고화체와 같은 rigid한 시편보다는 아스팔트나 파라핀 고화체와 같은 flexible한 고화체 시편에 매우 적합할 것으로 보인다. 대략적인 총 시험기간은 8개월 이상으로 하고 필요에 따라 그 기간을 연장할 수 있게 되어 있다.

ANS 16.1[3]에서는 90 일간의 시험기간을 요구하고 있는데 이 기간동안 침출시험의 진행에 따라 침출구에 어떠한 변화가 있는지 알아보기 위한 것이다. 고화체로부터 관찰된 초기 침출율은 대부분 확산에 의해 설명되고 있으며 침식, 용해 또는 부식에 같은 다른 기구는 오랜 침출 시간 후에 구별할 수가 있다. 시멘트 고화체에 대하여 5 및 90일 시험을 비교한 결과 대부분의

시편에 대하여 5 일과 90 일 사이의 침출지수의 차는 비교적 작으므로, 시멘트 고화체에 대해 5 일간 침수시험이면 충분하다고 한다[4].

그리고 프랑스의 FT-04-020 침출시험법[5]은 실제 방사성 폐기물로 행하거나, 고화체 폐기물을 대표할 수 있는 시편으로 행해지며, 소규모 시편 또는 실고화체 크기의 시편으로 수행할 수 있다. 이 시험법은 국제 규정인 ISO 6961에 근거를 두고 있으며 ISO-6961은 E.D.HESPE (IAEA)법에 근거를 두고 있다.

본 연구에서는 현재 중저준위 처분장을 운영하고 있는 미국과 프랑스 그리고 IAEA에서 권고하고 있는 시험법들인 ANS 16.1, FT-04-020 및 HEPSE method을 이용하여 방사성 핵종( $^{60}\text{Co}$ 과  $^{137}\text{Cs}$ )을 함유한 시멘트 및 파라핀 고화체에 대해 침출시험을 수행하였으며, 침출 시험결과를 상호 비교평가하기 위하여 반무한 침출 확산모델을 적용하였다.

1. 각국의 침출시험법

1.1 IAEA 침출시험법

침출시험에서 침출액 교체마다 침출액내로 누출된 핵종의 방사능을 측정후 아래 식을 이용하여 도식화하고, 도식화된 직선으로부터 기울기를 계산하여 유효 확산계수( $\text{cm}^2/\text{day}$ )를 구한다.

$$\frac{\sum a_n}{A_0} / \frac{S}{V} \text{ versus } \sum t_n$$

또는

$$\frac{\sum a_n}{A_0} \text{ versus } \sum t_n$$

여기서,

$a_n$  : 침출액 교체기간(n)동안에 침출된 방사능(Bq or  $\mu$  Ci)

$A_o$  : 시편의 초기 방사선량(Bq or  $\mu$  Ci)

S : 시편의 노출면적( $\text{cm}^2$ )

V : 시편의 부피( $\text{cm}^3$ )

$t_n$  : 침출액 교체기간(day).

침출액 교환시 누출된 방사능을 침출 교체시간  $t = [t_n - (t_n - t_{n-1})] / 2$  에 대하여 아래 식을 이용하여 침출율을 계산한다.

$$R_n = \frac{a_n / A_o}{(S / V) t_n}$$

### 1.2 프랑스의 FT-04-020 시험법

각 핵종에 대해 침출시간  $t_i$  후의 침출율은 아래 식으로 구한다.

$$FL = \frac{a_i}{A_i}$$

여기서,

$a_i$  : i단계에서 누출된 방사능(Bq or Ci)

$A_i$  : 시간 ( $t_o + t_i$ )에서 계산된 시료의 초기 방사능(Bq 또는 Ci), 여기서  $t_o$ 는 초기 침출시험기간

그리고 침출 연간 방사능 분율은 다음과 같은 관계로 표현한다.

$$FAL = \sum \left( \frac{a_i}{A_i} \right)$$

침출 연간 방사능 분율은, 실제 포장물의 다른 크기 시편에 대해서 얻은 경우에는 포장물과 시료에 대해 침출 속도가 동일하다는 가정하에 보정이 이루어져야 한다.

$$FAL = \sum \left( \frac{a_i}{A_i} \right) \frac{v1}{s1} \frac{S}{V}$$

여기서

v1 : 초기 시료의 부피 ( $\text{m}^3$ (혹은  $\text{cm}^3$ ))

s1 : 침출액에 노출된 초기 시료의 표면적 ( $\text{m}^2$ (혹은  $\text{cm}^2$ ))

s : 포장물의 외관 면적 ( $\text{m}^2$ (혹은  $\text{cm}^2$ ))

v : 포장물의 부피 ( $\text{m}^3$ (혹은  $\text{cm}^3$ ))

평균 침출속도는 초기 침출 단계를 지난 후 계산되며, 각 핵종에 대해 다음과 같은 식으로 표현한다.

$$R_o = \sum \left( \frac{a_i}{A_i} \right) \frac{V}{S} \frac{1}{\sum \Delta t_i}$$

여기서

$R_o$  : 포장물의 평균 침출속도는 m/s (혹은 cm/d) 혹은  $\text{kg}/\text{m}^2$  (혹은  $\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$ )인데, 이는 먼저 얻는 값에 포장물의 비중  $\text{kg}/\text{m}^3$  (혹은  $\text{g}/\text{cm}^3$ )을 곱해서 얻는다.

$\sum \left( \frac{a_i}{A_i} \right)$  : 이는 연간 방사선 침출율로서, 경우에

따라서는 크기에 따라서 보정된 값

여기서,

V : 포장물의 부피,  $\text{m}^3$ (혹은  $\text{cm}^3$ )

S : 침출액에 노출된 포장물의 초기 기하학적 면적,  $\text{m}^2$ (혹은  $\text{cm}^2$ )

### 1.3 미국의 ANS 16.1 시험법

본 시험법에서는 고화체로부터 침출된 방사능이 20%이하인 경우에는 침출기구는 주로 확산저동에 의한 것으로 판단하여 아래와 같은 과정을 거쳐 최종 침출지수를 구한다.

$$D = \delta \left[ \frac{a_n/A_o}{(\Delta t)_n} \right]^2 \left( \frac{V}{S} \right)^2 T$$

여기서,

D = 유효확산계수( $\text{cm}^2/\text{s}$ )

V = 시편의 체적( $\text{cm}^3$ )

S = 시편의 표면적( $\text{cm}^2$ )

$$T = \left[ \frac{1}{2} (t_n^{1/2} + t_{n-1}^{1/2}) \right]^2$$

n 번째 침출구간의 평균시간을 의미하는 침출시간

위 식에서 구한 유효확산계수로부터 아래 식을 이용하여 침출지수를 결정한다.

$$Li = \frac{1}{10} \sum_1^{10} [\log(\beta/Di)]_n$$

여기서,  $\beta$ 는 결정되어 있는 상수이며( $1.0 \text{ cm}^2/\text{s}$ ),  $D_i$ 는 시험자료로부터 계산된 핵종 i의 유효확산계수이다.

II. 재료 및 실험방법

1. 침출시험용 시험시편 제조

1.1 시편의 재료

고화체 제조에 사용된 시멘트는 포틀란트 I형, 파라핀 왁스는 국내 원자력발전소에서 사용하고 있는 Aristowax 165(fully refined paraffin wax)와 순도 99.8%인 미세분말 형태의 붕산, 이온교환수지로는 IRN-150LC를 사용하였다.

침출수로 탈염수(pH = 6.02, L(conductivity) = 1.01  $\mu$ S/cm) 와 ANS 16.1에 기술된 합성해수(pH = 8.19, L(conductivity) = 51.0  $\mu$ S/cm)를 이용하였다.

1.2 시멘트 고화체

고화체의 침출시험을 위한 고화체 제조는 KSL 5109(2001)에 기술된 혼합용기를 사용하였으며 또한 기술된 혼합시간 및 혼합속도에 따라 방사성 고화체를 제조하였다.

이때 붕산함유 시멘트 고화체 제조를 위하여 붕산폐액은 70℃에서 붕산의 농도가 12 wt.%가 되도록 한 후, NaOH로 중화처리하여 pH가 8이 되도록 하였다. 고화 혼합비율은 무게비율로 붕산농축폐액 / 시멘트 / 소석회 = 39.0 / 55.1 / 5.9(wt.%)로 하였다[6].

한편 폐수지함유 시멘트 고화체의 혼합비율은 폐수지/물/시멘트/소석회 = 9.40/22.11/61.69/6.68 (wt.%)이 되도록 하였다. 폐수지와 물의 비율을 결정하기 위하여 폐수지(IRN-150LC)의 수분함유율은 50.67 wt.%, 습윤수지의 진밀도는 1.1138 g/cm<sup>3</sup>, 수지사이의 공극율은 34.5%로 하였다. 따라서 수지내부의 물은 시멘트 고화에 참여치 않고 오직 수지사이의 공극에 존재하게 되는 물만 시멘트고화에 참여하는 것으로 계산하였다. 그리고 물은 100 ppm의 붕산을 함유하는 것으로 하였다.

1.3 파라핀 고화체

Fig. 1의 반응용기에 먼저 파라핀왁스를 주입하여 완전히 녹인 후 투입구를 통해 붕산을 조금씩 넣으며 교반기를 사용하여 혼합하였다. 가열온도는 파라핀왁

스의 전열벽면에서의 탄화방지를 위하여 90~100℃를 유지하였고, 교반기의 교반속도는 약 180 rpm으로 하였다. 약 10분 동안 혼합시킨 후 완전하게 섞인 혼합물을 polyethylene 원통형 몰드에 담아 약 15일간 경화시킨 후 몰드를 제거하여 시편을 제조하였다. 이때 붕산과 파라핀 왁스의 혼합비는 원자력발전소의 파라핀 고화공정의 운전기록을 참조하여 무게비(%)로 70 : 30으로 하였다.

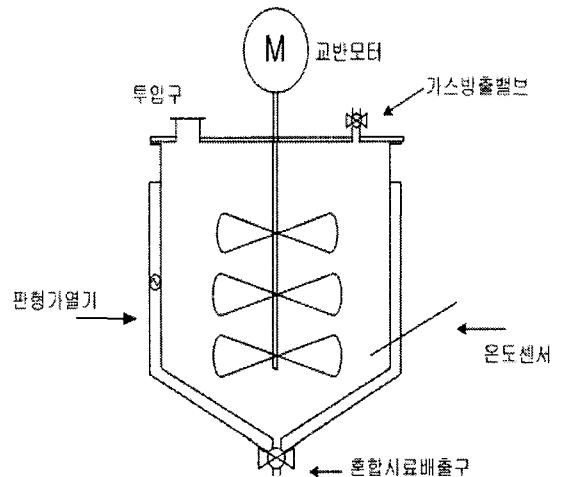


Fig. 1. Parafin Wax Mixer

1.4 초기 방사능량

고화체의 침출특성을 규명하기 위하여 분석이 용이한 방사성 추적자를 이용하였는데 방사성 추적자로 <sup>60</sup>Co과 <sup>137</sup>Cs을 이용하였다. 고화체에 주입된 방사능량은 사전에 연구소의 실험과 Co와 Cs 염의 용해도(수용성 및 불용성 정도) 그리고 고화매질을 고려하여 결정하였다. 본 연구에서 수행한 각국의 표준 침출시험법의 상호비교를 위하여 동일 크기의 시편에 동일한 방사능이 주입되도록 하였으며 이때 시편의 크기는 직경/높이 = 1로 하면서 직경이 50, 80mm인 시편들을 제조하였다. 시편크기와 고화매질별 주입된 핵종별 방사능량은 Table 1과 같다.

Table 1. Activities of <sup>60</sup>Co and <sup>137</sup>Cs Incorporated in Waste Form

고화 매질	시편 크기, mm	폐기물 종류	방사능량, $\mu\text{Ci}$	
			<sup>60</sup> Co	<sup>137</sup> Cs
시멘트	50	붕산	54.10~59.13	18.87~19.71
		폐수지	55.92~60.39	19.88~23.94
	80	붕산	204.26~242.75	71.87~80.92
		폐수지	246.31~258.10	88.705~92.95
파라핀	50	붕산	35.55~38.88	12.949~14.92
	80		149.81~160.91	54.349~62.06

2. 침출 시험방법

2.1 IAEA의 침출시험

Fig. 2처럼 고화체 제조 몰드용기를 그대로 사용하면서 고화체의 상부만을 노출시켰는데 이를 위하여 용기와 고화체간의 틈을 에폭시 접착제와 순간접착제를 순차적으로 반복 사용하여 고화체가 침수되었을 때 고화체와 용기 틈사이로 침출수의 입출입이 불가능하게 하였다. 이어서 침출수/시편의 노출면적  $\leq 10\text{cm}$ 의 침출수 양을 넣을 수 있는 용기속에 시편을 주입하였다.

이때 시편이 침출용기의 정중앙 부분에 위치토록 하기위하여 접착면을 최소로 하면서 내부식성 특수강의 줄을 이용하였으며 침출용기의 2중 덮개중 안쪽 덮개에 걸어 흔들림이 없도록 하였으며, 또한 장기간에 걸친 시험기간중에 침출수의 증발이 없도록 하였다.

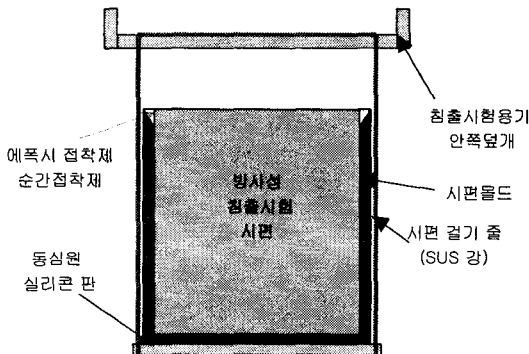


Fig. 2. Specimen for Leaching Test

침출시험은 상온( $25 \pm 5^\circ\text{C}$ )에서 수행하였으며, 침출시험 시작 후 일주일 동안은 매일 1회씩, 8주 동안에는 주 1회씩, 6개월 동안에는 월 1회씩 침출수(탈염수와 합성해수)를 교체하였으며, 침출액 150ml를 채취하여 pH, conductivity 그리고 핵종별 방사능을 분석하였다.

2.2 프랑스 FT-04-020의 침출시험

본 시험법은 IAEA법과는 달리 시편의 전면을 침출수에 노출토록 하며, 침출수로 처분장의 지하수로 수행토록 요구하고 있으며 침출수 교체시기에 차이가 있다. 따라서 본 연구에서는 Fig. 2에서 시편몰드를 제거하여 시편의 전면을 침출수(탈염수와 해수를 사용)에 노출되도록 가공하였다. 침출수/시편의 노출면적  $\leq 10\text{cm}$ 의 침출수 양을 넣을 수 있는 용기속에 시편을 주입하여 상온에서 침출시험을 수행하였다. 침출수 교체는 누적일수로 3, 7, 15, 60, 90, 180, 270일로 하였다. 침출수 교체시 침출액 400ml를 채취하여 pH, conductivity 그리고 핵종별 방사능을 분석하였다.

2.3 미국 ANS 16.1의 침출시험

침출시험은 FT-04-020과 동일하게 수행하였으며 다만 침출수 교체는 누적시간으로 2, 7, 24, 28, 72, 96, 120, 456, 1128 그리고 2160시간으로 수행하였다. 침출수 교체시 침출액 400ml를 채취하여 pH, conductivity 그리고 핵종별 방사능을 분석하였다.

### III. 결과 및 논의

#### 1. IAEA의 침출시험 결과

Fig. 3에 봉산이 함유된 시멘트 고화체로부터 침출된  $^{60}\text{Co}$ 의 누적 침출분율, Fig 4에는 파라핀 고화체로부터 침출된  $^{60}\text{Co}$ 의 누적 침출분율을 나타냈다. 그리고 Fig. 5에는 두 고화체의  $^{137}\text{Cs}$ 에 대한 누적 침출분율을 나타냈다. Fig 3과 4에서 보듯이 파라핀 고화체에서  $^{60}\text{Co}$ 의 침출이 시멘트 고화체에 비하여 약 100배 정도 높게 침출됨을 알 수 있다. 그리고 Fig. 3에서 침출시간이 증가함에 따라 탈염수보다는 합성해수에서  $^{60}\text{Co}$ 의 침출이 증가함을 알 수 있으며 이와 반대로 파라핀 고화체에서는 탈염수에서  $^{60}\text{Co}$ 의 침출이 높음을 알 수 있다. 고화체 종류에 따른 침출의 차이는 Co가 불용성 화합물로 전환되는가에 의존하는 것으로 보이며, 침출수의 종류에 따른 침출정도의 차이는 침출수내의 염의 농도와 매우 밀접한 관계가 있는 것으로 판단된다. 즉 시멘트나 파라핀 고화체에서의 침출기구는 확산에 의해 지배되는 것으로 볼 때, 침출수내의 염의 농도구배에 의존하기 때문이다.

한편 Fig. 5에서 보듯이  $^{137}\text{Cs}$ 의 경우도 동일한 고화체에 있어서 합성해수보다는 탈염수에서 침출이 잘 일어나고 있음을 알 수 있다. 파라핀 고화체보다 시멘트 고화체에서 침출이 높은 것은 파라핀 고화체질은 소수성 물질인 반면에 상대적으로 시멘트 고화체가 다공성 구조를 갖고 있는 것에 기인한 것으로 보이며, 동일 고화체에 있어서 합성해수보다 탈염수에서 침출이 잘 일어나는 것은 침출수내의 염의 농도 차이에 기인하는 것으로 보인다.

#### 2. FT-04-010의 침출시험 결과

FT 시험에 의한 침출결과는 IAEA의 침출결과와 거의 동일한 확산에 의한 침출거동을 보이고 있지만, Fig. 6과 7에서 보듯이 시멘트 고화체와 파라핀 고화체에 있어서 침출분율의 수치로 볼 때 합성해수와 탈염수에서의  $^{60}\text{Co}$ 의 침출정도는 다소 합성해수에서 높지만 차이는 미미한 정도이다.

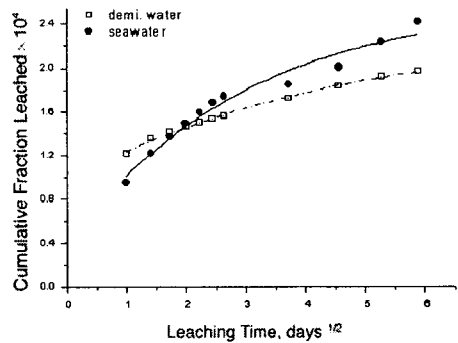


Fig.3. Cumulative Fraction of  $^{60}\text{Co}$  Leached in Cement Waste Form (D = 50mm) Incorporated Borate Waste

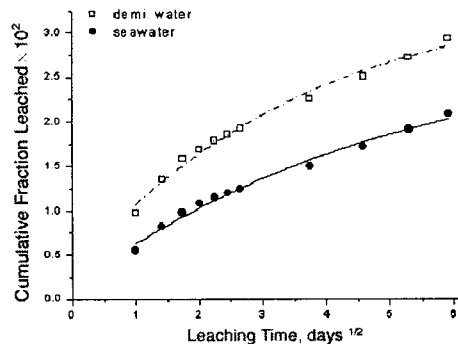


Fig. 4. Cumulative Fraction of  $^{60}\text{Co}$  Leached in Paraffin Waste Form (D = 50mm) Incorporated Borate Waste

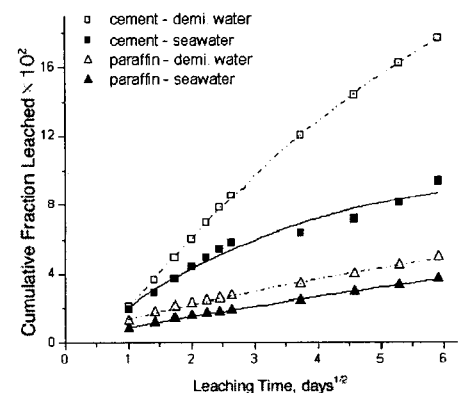


Fig. 5. Cumulative Fraction of  $^{137}\text{Cs}$  Leached in Cement and Paraffin Waste Form (D = 50mm)

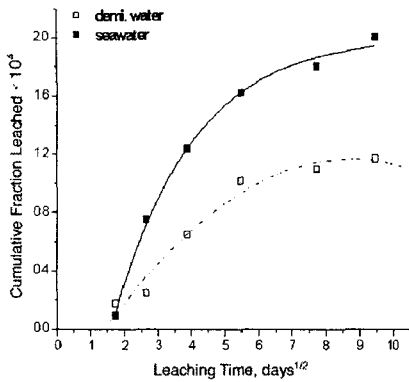


Fig. 6. Cumulative Fraction of <sup>60</sup>Co Leached in Cement Waste Form(D=50mm)

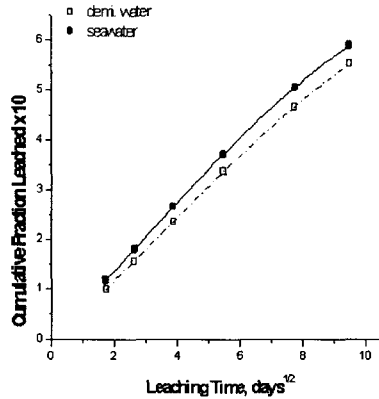


Fig. 7. Cumulative Fraction Leached of <sup>137</sup>Cs in Paraffin Waste Form(D=50mm)

Fig. 8에서 보듯이 시멘트 고화체에서는 <sup>137</sup>Cs의 침출 정도는 해수보다 탈염수에서 높음을 알 수 있는데 이는 Cs의 염이 수용성 염인 까닭으로 탈염수의 염 농도가 낮기 때문일 것이다. 반면에 파라핀 고화체에 있어

서는 침출경향 및 그 정도가 매우 유사하였다.

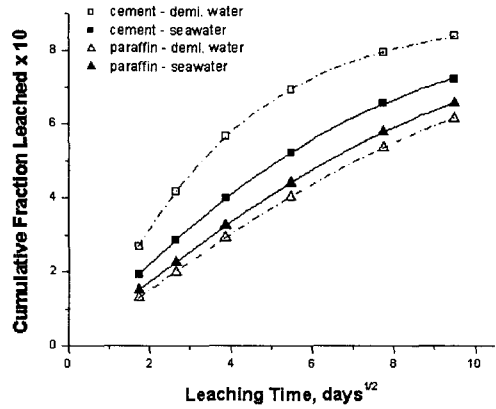


Fig. 8. Cumulative Fraction Leached of <sup>137</sup>Cs in Cement and Paraffin Waste Form(D=50mm)

FT 시험법은 IAEA 시험법과는 달리 침출수의 교체가 빈번하지 않은 시험법이나 고화체 종류에 따른 핵종의 침출정도 차이는 고화매질의 친수성 여부 및 고화체의 다공성 구조 그리고 Co와 Cs 염의 불용성 여부에 밀접한 관계가 있을 것으로 보인다.

### 3. ANS 16.1의 침출시험 결과

ANS 16.1의 시험법에 따라 계산된 침출지수를 Table 2에 나타냈다. Table에서 보듯이 고화체 종류 및 침출수 종류에 따른 핵종별 침출지수는 6.0 이상임을 알 수 있다.

그리고 IAEA의 시험결과 해석법에 따라 <sup>60</sup>Co, <sup>137</sup>Cs의 침출 거동양상을 살펴보기 위하여 누적 침출분율을 계산하여 Fig. 9 ~ 11에 나타내 보았다.

Table 2. Leachability Index Calculated by ANS 16.1

	Cement Waste Form		Paraffin Waste Form	
	Demi Water	Sea Water	Demi Water	Sea Water
<sup>60</sup> Co	13.46~15.03	14.0~14.82	7.64~8.10	7.52~7.76
<sup>137</sup> Cs	6.82~7.17	6.84~7.80	7.44~7.76	7.33~7.44

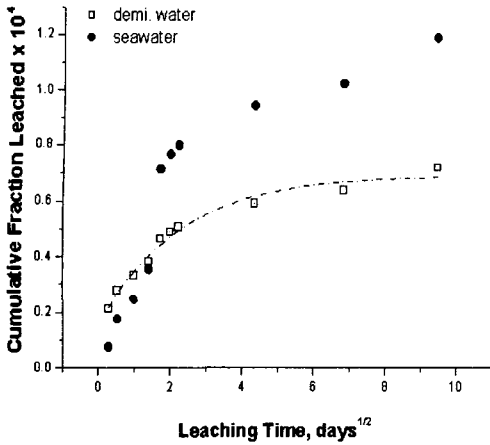


Fig. 9. Cumulative Fraction of <sup>60</sup>Co Leached in Cement Waste Form(D=50mm)

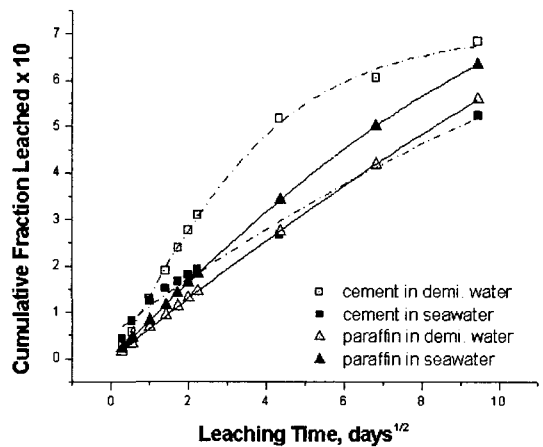


Fig. 11. Cumulative Fraction Leached of <sup>137</sup>Cs in Cement and Paraffin Waste Form(D=50mm)

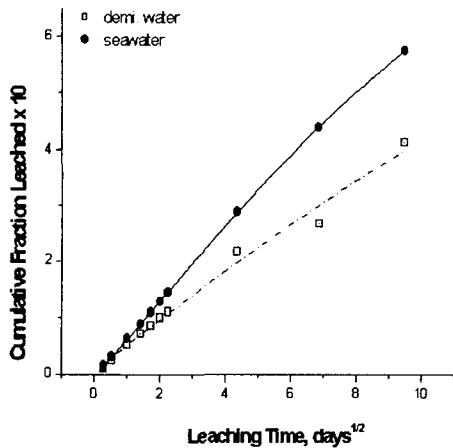


Fig. 10. Cumulative Fraction Leached of <sup>60</sup>Co in Paraffin Waste Form(D=50mm)

Fig. 9와 10에서 보듯이 시멘트 및 파라핀 고화체에서의 Co의 침출은 모두 합성해수에서 높았고, 반면에 Fig. 11에서 보듯이 시멘트 및 파라핀 고화체에서의 Cs의 침출은 모두 탈염수에서 높았다. 이러한 차이는 타 침출시험과 유사하게 고화체내 Co와 Cs 염의 용해도 차이와 침출수내의 염의 농도차이에 기인하는 것으로 보인다.

Fig. 9와 11에서 시멘트 고화체로부터의 침출은 확산에 의한 것임을 알 수 있으며, Fig. 10과 11에서 파라핀 고화체로부터의 침출은 핵종이 지속적으로 누출되는 것으로 보아 확산과 다른 요인에 의한 것으로 추측이 된다.

#### 4. 침출액의 pH와 전기전도도의 상호비교

침출시험에 사용된 탈염수의 초기 pH는 6.02, 전도도는 1.01  $\mu$ S/cm, 그리고 합성해수는 각각 8.19, 51.0이었다.

Fig.12와 13에 각 시험의 절차대로 침출액(탈염수 및 합성해수)를 교체하여 측정된 pH와 전도도를 나타냈다. 그림에서 보듯이 시멘트 고화체에 대하여 탈염수를 침출수로 사용한 경우, 침출시간이 경과될수록 pH와 전도도는 증가하였으며, 일정시간부터는 거의 비슷하였으며, 전도도도 pH와 유사한 거동을 보였다. 그리고 합성해수인 경우 탈염수와 달리 pH는 다소 증가하였으며, 전도도는 오히려 다소 떨어졌다.

따라서 합성해수보다는 탈염수를 사용한 경우에 있어서 상대적으로 고화체로부터 염의 용출이 많기 때문에 핵종의 침출도 많이 될 것으로 판단되어진다. 앞의 3개 시험결과로 미루어 볼 때, Co의 염은 불용성 염이고 침출된 양이 매우 낮기 때문에 침출액의 pH와 전도



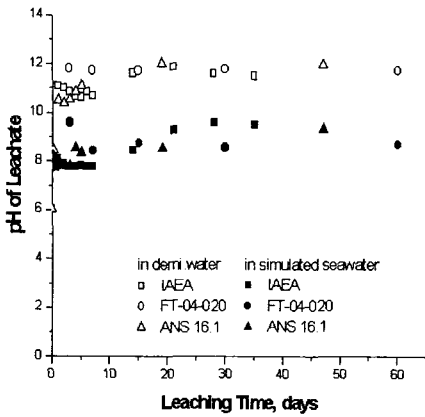


Fig. 12. pH of Leachate in Cement Waste Form (D = 50mm)

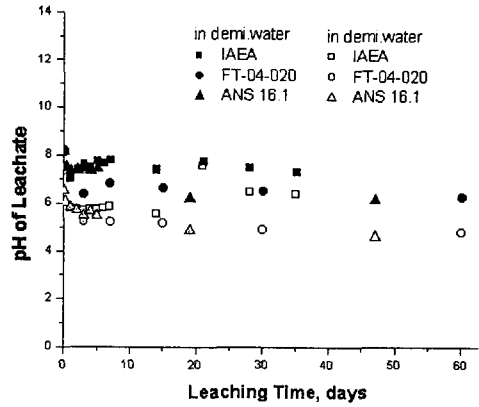


Fig. 13. Conductivity of Leachate in Cement Waste Form (D = 50mm)

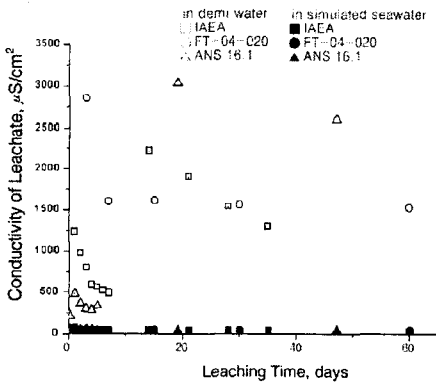


Fig. 14. pH of Leachate in Paraffin Waste Form (D=50mm)

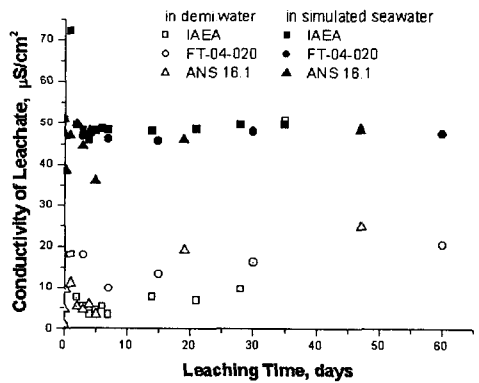


Fig. 15. Conductivity of Leachate in Paraffin Waste Form (D=50mm)

도를 증가시키는데 Cs를 비롯한 시멘트 구성물질의 염들이 기여하였을 것으로 보인다.

탈염수와 합성해수 모두 침출액의 pH에 있어서 침출 초기 단계에서는 ANS < IAEA < FT의 순서대로 변화의 폭이 비교적 컸다. FT는 타 시험법과 달리 침출수의 교체 빈도가 매우 낮기 때문에 교체 기간동안 시멘트 구성물질들이 용출되었기 때문일 것으로 보인다.

그리고 Fig. 14와 15에 파라핀 고화체의 침출액(탈염수 및 합성해수)을 교체하여 측정된 pH와 전도도를 나타냈다. 파라핀 고화체는 시멘트 고화체와 달리 고화체 구성물질에 폐기물 이외에는 pH와 전도도에 기여할 물질이 전혀 없기 때문에 순수하게 폐기물내의 붕산염

들이 이들 특성에 기여하였을 것이다.

Fig. 14에서 보듯이 붕산의 염들이 용출되어 탈염수와 합성해수 모두에서 pH는 감소하였으며, Fig. 15에서 탈염수를 침출수로 사용한 경우 전도도가 다소 증가한 반면에 합성해수를 침출수로 사용한 경우에는 반대로 감소하였다.

탈염수와 합성해수 모두 침출액의 pH에 있어서 IAEA < FT < ANS의 순서대로 변화의 폭이 비교적 컸다. 이는 ANS는 FT와 동일하게 시편을 침출수에 전면 노출시키고 침출수의 교체 빈도가 높기 때문일 것으로 보인다.

5. <sup>60</sup>Co 누적 침출분을 상호비교

시험평가 대상인 3개의 시험법을 수행하여 얻은 결과를 Fig. 16 ~17에 정리하였다.

IAEA 시험법은 FT와 ANS 시험법과 달리 고화체의 한 단면만을 침출수에 노출시키고, 침출수의 양도 매우 적기 때문에 이들 3개 시험법을 동시에 비교하기는 어렵다. 따라서 각 시편의 노출 표면적과 부피를 고려하여 반무한 확산 모델식을 이용하여 누적 침출분율을 계산하여 이들을 비교하였다.

시멘트 고화체의 Co 침출은 파라핀 고화체에 비하여 약 100배정도 낮으며, Fig. 16처럼 확산기구에 의해 일어나고 있지만 파라핀 고화체는 Fig. 17처럼 확산이외의 요인에 의해 침출이 일어나고 있음을 알 수 있다. Fig 16에서 보듯이 Co의 누적침출 분율은 FT < ANS < IAEA 순으로 높았다. 이러한 이유는 각 시편의 노출 표면적과 부피를 고려할 때 IAEA에서의 V/S는 5.0, FT와 ANS에서의 V/S는 0.83이기 때문이다.

침출수 교체에만 차이가 있는 FT와 ANS 시험 결과에 있어서 ANS에서 침출이 높은 이유는 침출수(탈염수의 전도도 = 1.01 μS/cm)의 잦은 교체가 불용성 염인 Co의 확산에 의한 침출 가속인자로 작용하였기 때문이다.

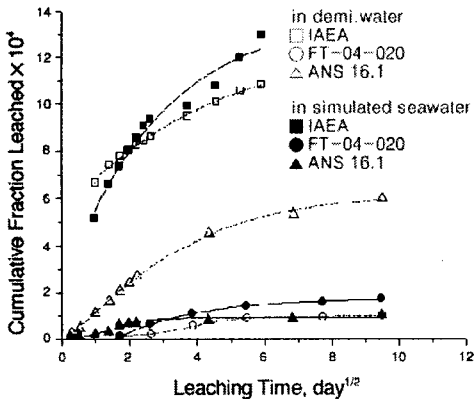


Fig. 16. Comparison of Cumulative Fraction of <sup>60</sup>Co Leached from Cement Waste Form

한편, 파라핀 고화체의 핵종 침출기구는 Fig. 17에서 보듯이 침출 시험기간동안 상당량(FT인 경우 60~65%)이 침출되었으며, 또한 지속적으로 핵종이 침출되는 것

으로 보아 확산이외의 요인에 의한 것으로 보인다. 즉 반무한 확산모델로 침출현상을 설명하기는 무리가 있지만 3개 시험법을 비교하기 위하여 반무한 확산모델을 이용하였다. 파라핀 왁스는 탄소수가 대략 20~25이기 때문에 용융점이 낮은 저분자량의 포화탄화수소 화합물로서 바인더(binder)로써 기대하기는 어려운 물질이다. 따라서 침출수의 양과 교체양이 많은 FT와 ANS에서 누적 침출분율이 높았음을 알 수 있다.

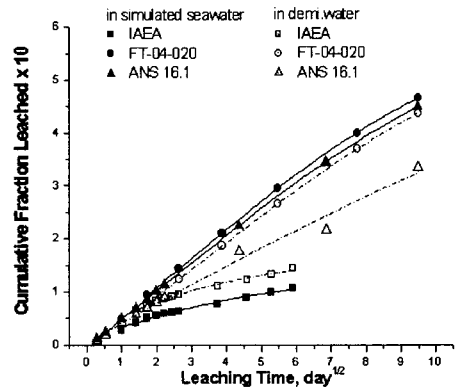


Fig. 17. Comparison of Cumulative Fraction of <sup>60</sup>Co Leached from Paraffin Waste Form

6. <sup>137</sup>Cs 누적 침출분을 상호비교

시멘트 고화체에서 Cs의 누적침출분율은 Co에 비하여 매우 높았다. 이는 앞서 기술한 침출액의 pH와 전도도 정도를 볼 때 Cs는 Co에 비하여 매우 높은 용해도를 갖는 수용성 염을 형성하기 때문이며, 또한 합성해수에서보다 탈염수에서 침출이 높았음을 Fig. 18은 보여주고 있다. 시멘트 고화체에서의 침출정도는 ANS < FT < IAEA순으로 높았다. IAEA가 ANS 및 FT에 비해 누적침출분율이 높게 도식된 것은 고화체의 부피/노출면적을 고려하였기 때문이다. 그리고 ANS < FT의 순서는 Co와는 반대되는 결과인데 즉 Co는 빈번한 침출수 교체시험법에서 높았으나 Cs는 반대로 침출수 교체가 빈번치 못한 시험법에서 침출이 높았다.

한편 파라핀 고화체에서의 Cs의 침출은 Co와 같이 지속적으로 핵종이 침출되는 것으로 보아 확산이외의 요인에 의한 것으로 보인다. 침출정도는 IAEA < ANS < FT순으로 높았다.

Comparative Evaluation of Various Standard Methods in Leaching Test of Radioactive Waste Form

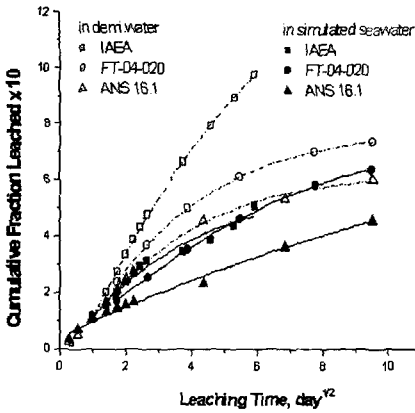


Fig. 18. Comparison of Cumulative Fraction of <sup>137</sup>Cs Leached from Cement Waste Form

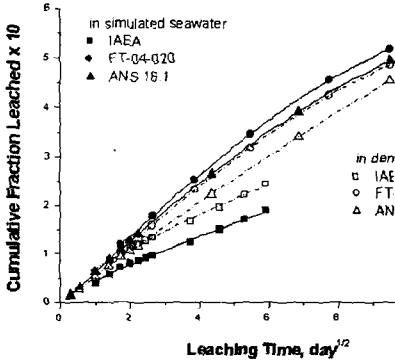


Fig. 19. Comparison of Cumulative Fraction of <sup>137</sup>Cs Leached from Paraffin Waste F

IV. 결론

IAEA Hepsé' method, FT-04-010 그리고 ANS 16.1의 침출시험법에 따라 침출수를 다양하게 하면서 붕산폐액을 함유한 시멘트 및 파라핀 고화체에 대하여 침출시험을 수행하여 얻은 결과는 아래와 같다.

가. 붕산을 함유한 파라핀 및 시멘트 고화체의 ANS 16.1 방법에서의 침출지수는 6 이상이었다. 시멘트 고화체는 확산에 의한 침출거동을 보였으나, 파라핀 고화체는 확산이외에 다른 요인이 부가된 복합 침출거동을 보였다.

나. 방사성 핵종(<sup>60</sup>Co, <sup>137</sup>Cs)의 침출거동은 고화매질과 탈염수의 종류에 따라 서로 상반되는 결과를 보였으며, <sup>60</sup>Co에 대한 누적침출분율은 파라핀 고화체가 시멘트 고화체에 비해 100배 정도 높았고 <sup>137</sup>Cs에 대한 누적침출분율은 2배 정도 높았다. 침출수로 합성해수와 탈염수를 사용하였을 경우 <sup>60</sup>Co의 누적침출분율은 합성해수에서 높았으며, <sup>137</sup>Cs의 누적침출분율은 탈염수에서 높았다.

다. 시멘트 고화체에 있어서 <sup>60</sup>Co의 누적침출분율은 ANS < FT < IAEA의 순으로 합성해수에서 높았으며, <sup>137</sup>Cs의 누적침출분율은 IAEA < ANS < FT의 순으로 탈염수에서 높았다.

라. 파라핀 고화체에 있어서 <sup>60</sup>Co와 <sup>137</sup>Cs의 누적침출분율은 IAEA < ANS < FT의 순으로 합성해수에서 높았다.

참고문헌

1. Characterization of Radioactive Waste Forms and Packages, Technical Reports Series No. 383, Vienna, 1997
2. E.D.Hespe, "Leach Testing of Immobilized Radioactive Waste Solids," Atomic Energy Review, vol. 9, pp. 195-207, 1971
3. ANS 16.1, "Measurement of the Leachability of Solidified Low-Level Radioactive Wastes by a Short-Term Test Procedure", 1986
4. United States Nuclear Regulatory Commission, Waste Form Technical Position, rev. 1, - Appendix A Cement stabilization.
5. "Caracterisation des Colis de Dechets Radioactifs Fable et Moyenne Activite", DRDD/BECC, 1984
6. 김찬용, 방사성폐기물 고화공정 프로그램개발, KRC-87N-J05(1989)