

Characteristics of the Decontamination by the Melting of Aluminum Waste

용융에 의한 알루미늄 폐기물의 제염 특성

**Pyung-Seob Song, Wang-Kyu Choi, Byung-Youn Min, Hak-I Kim,
Chong-Hun Jung and Won-Zin Oh**

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duckjin-dong, Yuseung-Gu, Daejeon
pssong@kaeri.re.kr

송평섭, 최왕규, 민병연, 김학이, 정종현, 오원진
한국원자력연구소, 대전시 유성구 덕진동 150번지

(Received December 16, 2004 / Approved March 14, 2005)

Abstract

Effects of the aluminum melting temperature, melting time and a kind of flux agents on the distribution of surrogate nuclide were investigated in the electric furnace at the aluminum melting including surrogate radionuclides(Co, Cs, Sr) in order to establish the fundamental research of the melting technology for the metallic wastes from the decommissioning of the TRIGA research reactor. It was verified that the fluidity of aluminum melt was increased by adding flux agent but it was slightly varied according to the sort of flux agents. The results of the XRD analysis showed that the surrogate nuclides move into the slag phase and then they were combined with aluminum oxide to form more stable compound. The weight of the slag generated from aluminum melting test increased with increasing melting temperature and melting time and the increase rate of the slag depended on the kind of flux agents added in the aluminum waste. The concentration of the cobalt in the ingot phase decreased with increasing reaction temperature but it increased in the slag phase up to 90% according to the experimental conditions. The volatile nuclides such as Cs and Sr considerably transferred from the ingot phase to the slag and dust phase.

Key words : Aluminum waste, Melting, Slag, Flux, Nuclide Distribution, Decontamination Factor

요약

TRIGA 연구로의 해체 시 발생하는 금속성 폐기물의 용융기술을 확립하기 위한 기초연구로 전

기로 내에서 방사성 핵종(Co, Cs, Sr)을 포함한 알루미늄의 용융 시 용융온도, 용융시간 및 플럭스(flux)의 종류가 핵종의 분배 거동에 미치는 영향을 조사하였다. 플럭스의 종류에 따라 다소 차이는 있으나, 플럭스의 첨가로 알루미늄 용융체의 유동성이 증가됨을 확인할 수 있었다. 용융 후 주괴(ingot) 및 슬래그(slag) 시료의 XRD 분석을 통해 핵종이 주괴에서 슬래그 상으로 이동하고 슬래그를 구성하고 있는 산화알루미늄과 결합하여 안정한 화합물을 형성함을 알 수 있었다. 슬래그의 발생량은 용융온도와 용융시간이 증가할수록 증가하는 경향을 보였으며, 증가속도는 플럭스의 종류에 따라 차이를 보였다. 핵종 중 Co는 용융온도가 증가함에 따라 주괴 내에서는 감소하였으나 슬래그 상에서는 증가하는 경향을 보였으며, 실험조건에 따라 최대 90%까지 주괴에서 슬래그로 이동하였다. 휘발성이 강한 Cs과 Sr은 대부분이 슬래그와 분진으로 이동하여 매우 높은 제염계수를 얻을 수 있었다.

중심단어: 알루미늄 폐기물, 용융, 슬래그, 플럭스, 핵종분배, 제염계수

I. 서론

전 세계적으로 산재해 있는 수많은 원자력시설은 향후 10~20년 안에 한계수명에 도달하게 되고 궁극적으로 해체될 실정이며, 이때 스테인레스강을 포함하여 탄소강, 알루미늄, 구리 등 다양하고 막대한 양의 방사성 금속폐기물이 발생할 것이다[1]. 국내의 경우 최초의 원자로인 TRIGA 연구로 및 우라늄 변환시설의 제염해체사업이 진행 중에 있으며 이들 원자력 연구시설의 해체를 통해 구조재 및 배관재 등 방사성 금속폐기물이 수백 톤 이상 발생할 것으로 예상되고 있다[2,3]. 방사성폐기물 처분장이 부재한 국내의 현실 및 원자력연구소 내 임시 폐기물 저장고의 수용한계를 고려하면 원자력 시설의 해체 시 발생하게 되는 막대한 양의 금속성 폐기물을 효과적으로 관리할 수 있는 방안이 시급히 요구되고 있다.

현재 금속성 폐기물의 대표적인 처리공정은 단순히 초고압 압축하여 처분하는 방법으로 이 방법은 부피 감용비가 낮고, 금속폐기물의 방사능 분포가 불균일하여 처리가 어려우며, 유용한 자원을 재활용 없이 폐기한다는 점에서 문제점을 지니고 있다. 원자력 연구시설의 해체 시 발생하는 금속성 폐기물은 대부분 방사능 오염도가 낮기 때문에 적절한 처리 공정을 통해 감용 및 재활용이 가능한데, 이러한 기술 중에서 가장 주목받고 있는 기술이 금속용융 기술이다[4,5].

유럽을 주축으로 미국과 일본에서 활발히 연구가 진행되고 있는 금속용융 기술은 다른 처리방법에 비해 부피 감용비가 크다는 장점을 가지고 있으며, Cs 및 Sr과 같은 휘발성 핵종이나 U과 같이 모재 금속과 반응성이 적은 핵종을 슬래그 상에 포집하여 제염하거나, Co와 같이 비휘발성인 방사성 핵종들을 주괴 내에 균일하게 분포시켜 방사능을 희석시킴으로써 비방사능을 낮출 뿐만 아니라, 용융금속의 결정격자 내에 방사성 핵종을 고정화시키는 특징을 가지고 있다 [6,7]. 또한, 유럽과 미국은 금속용융에 의해 생성된 탄소강, 스테인레스강 그리고 알루미늄 등의 주괴를 사용하여 원자력 시설내에서 제한적으로 재사용할 수 있는 광범위한 시나리오를 수립했을 뿐만 아니라, 실제적으로 폐기물 이송용 컨테이너, 차폐체, 방사성 폐기물의 처분 드럼 등으로 제작하여 사용하고 있다. 이러한 사례들을 살펴볼 때 우리도 금속용융에 의한 부피감용 및 생성된 주괴의 제한적 재사용에 대해 검토하는 검토가 필요한 실정이다[1,8].

따라서, 본 연구에서는 원자력 연구시설의 해체 시 발생하는 금속성 폐기물의 용융기술을 확립하기 위한 기초단계로서 TRIGA 연구로의 해체 시 발생하는 알루미늄 폐기물을 대상으로 용융 특성 및 용융 시 오염 핵종의 거동을 조사하였다. 이를 위하여 전기로 내에서 용융온도, 용융시간 및 플럭스의 조성이 알루미늄의 용융 및 모의 방사성 핵종의 분배 거동에 미

치는 영향을 고찰하였다.

II. 이론

금속용융 기술은 금속성 폐기물의 용융 시 금속 폐기물 표면 및 내부에 존재하는 방사성 핵종을 슬래그 상으로 이동시키거나 금속 모재 상에 균일하게 희석 시킴으로써 금속 모재의 비방사능을 감소시켜 제염의 역할을 하며, 궁극적으로는 처분대상 폐기물을 감용하고 재활용하는 기술이다.

금속성 폐기물의 용융 시 금속 용융체로부터 슬래그 상으로 방사성 핵종이 제거되는 메커니즘은 Fig. 1과 같이 나타낼 수 있다. 첫 번째 단계는 금속 용융체상(melt phase)에 존재하는 방사성 핵종이 금속 산화물에 결합되어 있는 산소와 반응하여 방사성 핵종의 산화물을 형성하는 단계이다. 이는 방사성 핵종과 금속 산화물에 존재하는 산소와의 화학적 친화력 차이에 의해 발생하는데, 방사성 핵종이 금속 원소보다 산소와의 화학적 친화력이 크다면 금속 산화물에 존재하는 산소는 금속 산화물로부터 이탈하여 방사성 핵종과 결합하여 방사성 핵종 산화물을 형성하는 것이다. 이러한 두 금속간의 화학적인 친화력의 차이는 열역학적 자유에너지로부터 유추할 수 있다[9]. 다음 단계는 비휘발성의 방사성 핵종 산화물이 여러 가지 요인에 의해 슬래그 상으로 이동하거나 휘발성 핵종일 경우에는 분진이나 증기로 배출되는 단계이다. Fig. 1에서 볼 수 있듯이 금속 용융체상에서 형성된 방사성 핵종 산화물은 자체적인 확산이나 비중 및 활동도 차이 그리고 교반에 의해 슬래그와 접촉하면서 슬래그 상으로 이동한다. 일반적으로 세슘(Cs)이나 스트론튬(Sr)과 같은 휘발성 핵종은 고온의 용융공정에 의해 대부분이 슬래그에서 분진이나 증기로 증발하고, 우라늄(U)과 같은 경우는 산화물을 형성하여 비중이 낮아질 뿐만 아니라 액체 금속과의 반응성이 매우 좋지 않기 때문에 슬래그 상으로 이동한다. 마지막 단계는 이렇게 이동한 방사성 핵종의 산화물이 슬래그의 주성분인 산화규소(SiO_2)나 산화알루미늄(Al_2O_3) 등과 결합하여 안정화되는 단계이다. 방사성 핵종의 산화물은 용융 금속이나 용융 슬래그에 있

는 다른 성분과 자유롭게 반응한다. 용융에 의해 금속으로부터 방사성 핵종 산화물이 제거되는 정도는 이 오염물과 슬래그상의 구성성분 사이에 형성된 화합물의 안정화도에 의해 좌우된다. 방사성 핵종들이 슬래그 상에서 보다 안정한 화합물을 형성할 때, 슬래그에서의 활동도는 감소하고 방사성 핵종의 대부분은 활동도 평형을 유지하기 위해 금속으로부터 슬래그로 이동하게 된다[10]. 이러한 공정은 평형이 이루어질 때까지 또는 동역학적으로 안정화가 이루어질 때까지 계속된다. 금속과 슬래그 사이에 방사성 핵종이 분배되는 정도는 슬래그의 성분과 열역학적으로 생성 가능한 화합물과의 안정화도나 시스템이 평형을 이룰 수 있는 정도에 의해 좌우된다[9,11].

III. 실험

알루미늄의 용융실험에는 온도와 시간이 자동으로 프로그램되며, 온도를 최대 1400 °C까지 유지할 수 있는 전기로(Program Controller C19/S19, Nabertherm Co.)와 150 cc 용량의 알루미늄 도가니를 사용하였다. 알루미늄 시편은 두께가 1 mm인 판을 10 mm × 10 mm의 크기로 절단한 후, 유기용제 및 오일과 같은 환원물질을 완전히 제거하기 위해 전처리를 거쳐 완전 건조하였으며, 1 회의 실험에 50 g의 알루미늄을 도가니에 투입하여 용융하였다. 방사성 오염핵종

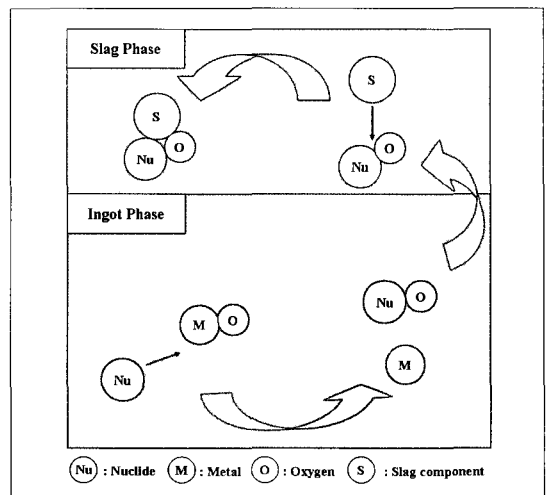


Fig. 1. The removal mechanism of radioactive nuclides by the melting.

의 거동을 평가하기위해 사용된 모의 핵종은 총 3가지로서 Co, Cs, Sr의 화합물(Table. 1)을 사용하였다. 알루미늄 용융체의 산화를 방지하고 유동성을 증가시켜 용융금속내의 핵종 이동을 쉽게 하며, 화합물을 형성한 핵종 원소나 불순물의 안정적인 제거를 위해 플럭스를 첨가하였다. 본 실험에 사용된 플럭스 및 모의 핵종의 형태와 알루미늄의 용융 조건을 Table 1에 수록하였다.

알루미늄 용융실험은 알루미늄 도가니에 50 g의 알루미늄을 넣은 후 그 중간에 모의 핵종을 첨가하였다. 전기로의 온도를 일정하게 유지시킨 후 모의 핵종과 알루미늄 시편이 담겨진 도가니를 전기로 내에 장입하였으며, 일정시간 동안 알루미늄이 용융되도록 하였다. 용융온도에 대한 모의 핵종의 분포 특성을 조사하기 위해서 알루미늄의 용융온도를 고려하여 730, 800, 900 °C로 온도를 변화시켜가면서 실험하였으며, 용융시간에 따른 핵종의 거동 특성을 고찰하기 위해서 일정 온도에 도달한 후 용융시간을 10, 20, 30분으로 변화시켜 용융실험을 수행하였다. 용융된 알루미늄의 용융체는 전기로에서 꺼내자마자 주형에 부어 실린더 형태의 주괴로 제조하였다. 이때 알루미늄 금속 용융체의 상부에 존재하는 슬래그는 알루미늄 용융체와 쉽게 분리되었다. 주괴와 슬래그로부터 채취한 시료는 적절한 전처리를 거친 후 Co 및 Sr은 ICP-AES (Ultramass 700, Varian)를 사용하여 분석하였으며, Cs은 AAS (5100 PC, Perkin-Elmer)를 사용하여 정량분석 하였다. 또한 XRD 분석을 통해서 주괴와 슬래그에 존재하는 화합물의 형태를 조사하였다. 각 상(phase)으로 이동한 핵종의 분배율은 각 상에서 샘플을 채취하여 ICP-AES로 분석하고 각 상

에 발생한 양을 측정하여 계산해야 정확한 값을 얻을 수 있지만, 전기로의 특성상 슬래그와 주괴만을 계산하고 분진으로 이동한 핵종의 분배율은 분진의 발생량을 정확히 측정하기 어려워 슬래그와 주괴만을 계산한 후 전체량에서 환산하여 계산하였다.

IV. 결과 및 고찰

플럭스를 첨가한 조건에서 알루미늄 시편을 용융시킨 후 용융된 형상을 Fig. 2와 3에 수록하였다. Fig. 2는 Table 1에 수록한 플럭스 A(NaCl, KCl, Na₃AlF₆의 혼합물) 및 플럭스 D(LiF, KCl, BaCl₂의 혼합물)를 첨가했을 때 도가니 내에서 알루미늄이 용융된 모습을 보여주는 사진이다. 이 두 가지 플럭스를 사용하는 경우에 있어서, 용융체 표면에 염층을 형성하는 형태의 차이가 있을 뿐 두 경우 모두에서 초기에 투입했던 알루미늄 사각 시편의 형태가 사라지고 유동성이 좋은 용융체가 형성됨을 알 수 있다. 이와는 달



Fig. 2. The melting sample of aluminum with flux A or D.



Fig. 3. The melting sample of aluminum with flux B or C.

Table 1. The experimental variables for melting of aluminum.

Variables	Composition
Flux (wt%)	A: NaCl(45%), KCl(40%), Na ₃ AlF ₆ (15%) B: NaCl(45%), NaF(40%), KF(15%) C: CaF ₂ (100%) D: LiF(14%), KCl(76%), BaCl ₂ (10%)
Surrogate nuclide (0.1 wt%)	CoCl ₂ · 6H ₂ O CsCl SrCl ₂ · 6H ₂ O
Melting time (min)	10, 20, 30
Melting temperature (°C)	730, 800, 900

리 Fig. 3은 Table 1에 수록한 플럭스 B(NaCl, NaF, KF의 혼합물)와 플럭스 C(CaF₂ 단독으로 이루어짐)를 각각 첨가한 경우에 얻어진 용융체의 형태를 보여주는 사진으로 초기에 투입했던 알루미늄 시편 모양이 그대로 남아 있는 슬래그 층과 그 하부에 알루미늄의 액체 금속 층으로 이루어짐을 관찰할 수 있다. 또한 플럭스 A 및 플럭스 D를 첨가한 실험의 결과에서는 알루미늄 용융체와 상부에 존재하는 슬래그와의 분리가 용이하고 슬래그 양이 매우 적은 반면에 플럭스 B 및 플럭스 C를 첨가한 용융 실험에서는 주괴와 슬래그의 층이 쉽게 분리되지 않을 뿐만 아니

라, 슬래그의 발생량도 앞의 경우와 달리 상대적으로 매우 많이 발생함을 알 수 있었다. 알루미늄 용융에 의해 생성된 슬래그와 주괴는 밀도의 차이에 의해 슬래그가 주괴의 상부에 위치하게 되며 상부에 위치한 슬래그는 플럭스의 종류에 따라 유동성이 매우 높은 것과 그렇지 않은 것으로 나타난다. 밀도차에 의해 주괴의 표면에 위치한 슬래그와 주괴의 표면에서는 물리적으로 특별한 변화가 나타나지는 않지만, 슬래그와 주괴 표면사이에서는 각 원소들의 화학적 퍼텐셜(potential)에 의해 평형을 이룰 때까지 계속적으로 활발한 반응이 일어나는 것으로 알려져 있다[9,10].

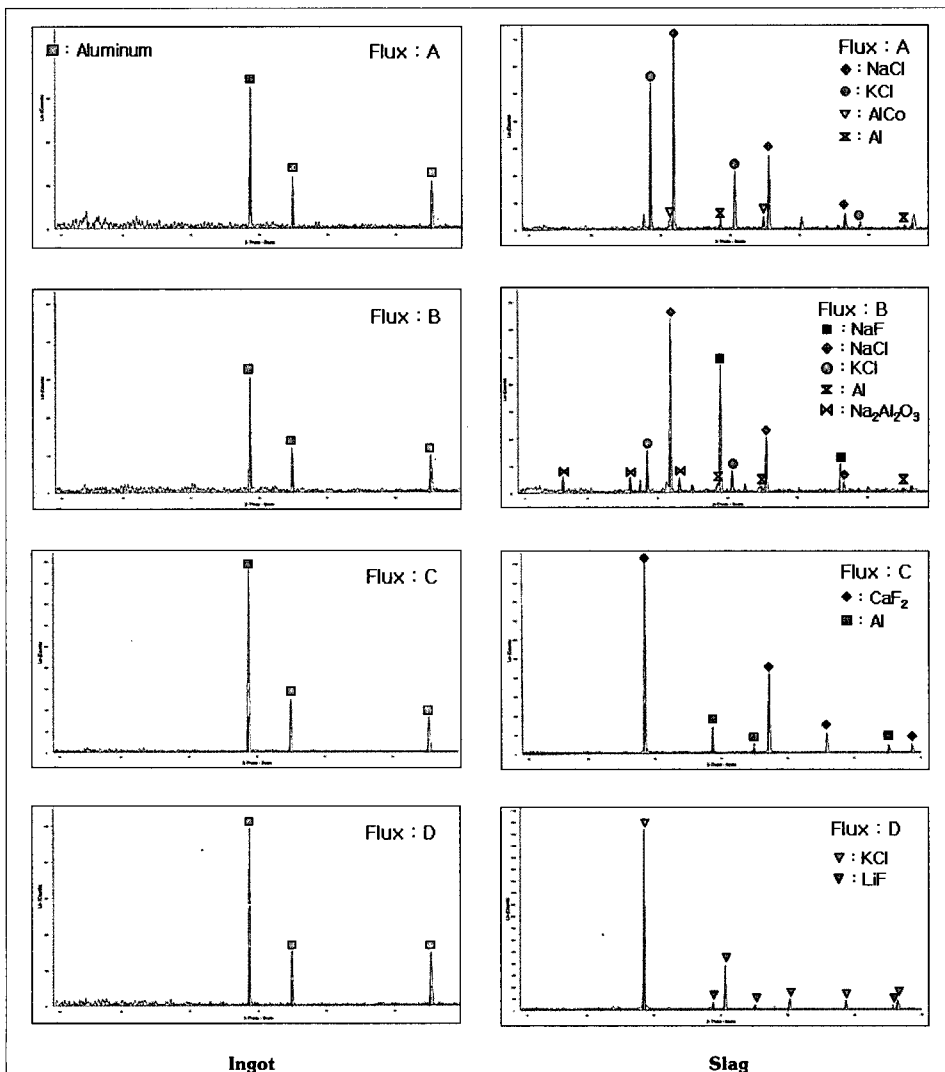


Fig. 4. Typical XRD of ingot and slag generated from aluminum melting.

Fig. 4는 플럭스를 첨가한 알루미늄의 용융 실험에서 얻어진 주괴와 슬래그의 XRD 분석결과로 주괴에서는 알루미늄이 검출되었으며 슬래그에서는 첨가한 플럭스의 성분과 모의 방사성 핵종과 알루미늄의 화합물이 검출됨을 확인할 수 있었다. 일반적으로 플럭스를 첨가하지 않은 경우에 주괴에서는 알루미늄만 검출되며 슬래그에서는 산화알루미늄이 검출된다. 그러나 플럭스를 첨가한 경우 주괴에서는 플럭스를 첨가하지 않은 경우와 마찬가지로 알루미늄만 검출되지만, 슬래그에서는 플럭스 자체의 성분뿐만 아니라 플럭스와 알루미늄의 화합물($\text{Na}_2\text{Al}_2\text{O}_3$) 및 모의 방사성 핵종과 알루미늄의 화합물(Al_2O_3)이 검출됨을 알 수 있다. 일반적으로 Flux는 용융체의 점성이나 전기전도도, 용융온도 등을 변화시켜주는 역할을 수행할 뿐 방사성 핵종과는 반응하지 않는 것으로 알려져 있으며, 이러한 사실은 Fig. 4에 나타난 XRD 결과에서도 확인할 수 있었다. 슬래그에 포집된 방사성 핵종은 슬래그 상에 존재하는 산화알루미늄과 결합하여 안정화됨을 확인할 수 있었다. 또한, Co는 탄소강이나 스테인레스강과 같은 금속의 용융 시에는 대부분이 주괴 내에 균일하게 분포됨으로써 회석에 의한 비방사능의 감소로 제염효과를 얻을 수 있다고 보고[12-14]되고 있지만 본 알루미늄의 용융 실험에서는 상당량의 Co가 슬래그 상으로 이동함으로써 회석보다는 방사성핵종의 제거에 의해 제염효과를 증진시킴으로써 비방사능을 더욱 감소시킬 수 있음을 예측할 수 있다. 이와 같이 금속용융 시 슬래그를 첨가하면 2차 폐기물의 발생량이 증가한다는 단점을 가지고는 있지만, 방사능이 매우 높은 물질들을 포집하여 비방사능을 감소시킴으로서 방사성 폐기물의 처리와 처분을 용이하게 하고 처리비용도 매우 감소시킬 수 있는 등의 많은 장점을 가지고 있다.

알루미늄의 용융에 있어서 용융시간이 증가함에 따른 슬래그의 발생량을 Fig. 5에 수록하였으며, 용융시간이 증가함에 따라 모든 경우에서 슬래그의 발생량이 증가함을 알 수 있었다. 이는 용융시간이 증가할수록 알루미늄 금속과 산소와의 접촉시간이 증가하여 알루미늄의 산화가 더욱 진행되기 때문이다. 그러나 슬래그의 증가 경향은 플럭스의 종류에 따라

다른 형태로 나타나고 있다. 유동성이 매우 좋은 플럭스 A 및 D를 포함하는 용융 실험의 경우에 있어서 슬래그는 용융 초기에 어느 정도 생성되다가 20분이 지난 후에는 일정해지는 양상을 보이고 있다. 다시 말해서 용융시간이 경과할수록 슬래그의 생성 속도가 점점 감소되는 경향을 나타내고 있다. 이는 알루미늄과 슬래그가 완전히 용융되어 두 층으로 분리되기 이전의 기간에는 산소와의 결합에 의해 슬래그의 발생량이 증가하다가 알루미늄과 슬래그가 완전히 용융되어 얇은 층을 형성한 후에는 슬래그 층이 산화를 억제하여 슬래그의 발생 속도가 감소하였기 때문으로 볼 수 있다. 또한 플럭스를 첨가하지 않은 용융 실험의 결과와 비교하였을 때 첨가한 플럭스의 양을 고려한다면 용융시간의 경과에 따라 다소 차이는 있지만 일반적으로 플럭스를 첨가한 경우가 첨가하지 않은 경우보다 적은 양의 슬래그가 발생함을 확인할 수 있었다. 다음은 상대적으로 유동성이 좋지 않은 플럭스 B 및 C를 사용했을 경우에 슬래그가 생성되는 형태로써 용융시간이 증가함에 따라 슬래그의 발생량이 지속적으로 증가하는 경향을 보여주고 있다. 이는 알루미늄 금속과 슬래그의 유동성이 매우 작아서 외부의 강제교반이나 용융로의 특성에 기인하는 자체교반이 없이는 슬래그 층의 형성이 매우 어렵기 때문에 용융시간에 비례하여 알루미늄의 산화가 진행된 결과로 판단된다.

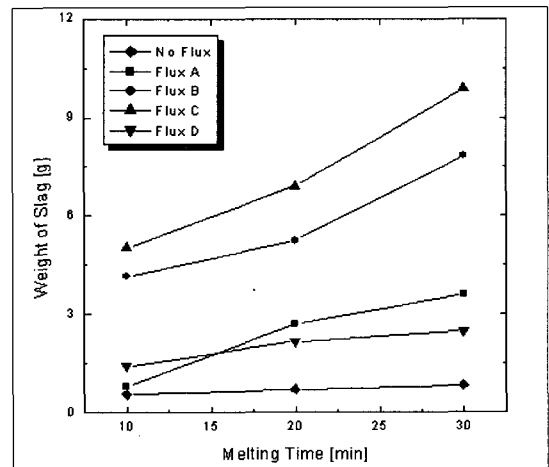


Fig. 5. Effect of the melting time on the amount of slag produced from melting.

Fig. 6은 용융온도의 증가에 따른 슬래그의 발생량 변화를 도시한 결과로 용융온도가 증가함에 따라 플럭스의 종류에 관계없이 슬래그의 발생량이 모두 증가하는 경향을 나타내었다. 이는 용융시간의 증가에 서와 동일하게 용융온도가 증가함에 따라서도 알루미늄의 산화속도가 증가하였기 때문으로 볼 수 있다. 이 결과에서도 마찬가지로 슬래그의 증가 경향은 두 가지로 나타나고 있으며, 이는 앞에서 설명하였듯이 플럭스의 특성에 기인하는 알루미늄 용융체와 슬래그의 유동성 차이에 의한 것이다. 용융온도의 증가에 따른 슬래그 발생량의 증가 경향은 용융시간의 영향과는 달리 증가속도가 완만한 것을 확인할 수 있었으며, 이로서 슬래그의 발생량은 용융온도보다는 용융시간에 더욱 밀접한 관계가 있음을 알 수 있다. 문헌에 의하면 알루미늄 용융에 의해 발생된 슬래그는 용해성 염(soluble salt)과 비용해성 잔류물(insoluble residue)로 구성되어 있으며, 수용성을 띤 용해성 염은 재순환 공정(recycling process)을 거쳐서 다시 재사용하고 방사성 핵종의 산화물로 구성되어 있는 비용해성 잔류물만 분리하여 폐기물로 처리한다고 발표하였다[6].

용융온도가 증가함에 따라 주괴와 슬래그 상에 존재하는 Co의 농도를 Fig. 7에 수록하였다. 이 결과로부터 주괴 상에서는 용융온도가 증가함에 따라 Co의 농도가 감소하며, 슬래그 상에서는 증가함을 알 수

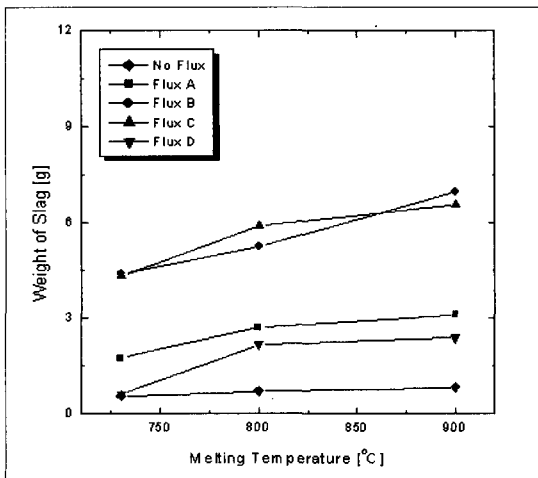


Fig. 6. Effect of the melting temperature on the amount of slag produced from melting.

있다. 이는 용융온도가 증가함에 따라 알루미늄 용융체의 점성이 낮아지고 유동성이 증가하여 확산에 의한 방사성 핵종의 이온 이동도가 증가하고, 증가된 이온의 이동도에 의해 슬래그 층으로 이동한 방사성 핵종의 이온들은 슬래그 층에 존재하는 산화알루미늄 화합물과 결합하여 보다 안정된 화합물을 형성하기 때문인 것으로 설명할 수 있다. 따라서 용융온도가 증가함에 따라 알루미늄 용융체 내에 존재하는 Co가 슬래그 층으로 이동함으로써 주괴에서는 용융온도가 증가함에 따라 Co의 농도가 감소하고 슬래그 층에서는 증가하는 경향을 나타낸다. Fig. 7에서 특히 주목할 점은 유동성이 낮고 슬래그의 발생량이 매우 많은 플럭스 조건(플럭스 B, C)에서 Co의 농도가 매우 높게 나타났다는 것이다. 이는 이론에서 설명한 바와 같이 급속 용융체에 존재하는 불순물이나 방사성 핵종은 열역학적 특성과 물리적인 특성에 의해 슬래그 층으로 이동하여 안정한 화합물을 형성하여 제거되는데, 플럭스 A와 플럭스 D를 첨가한 용융체는 유동성이 커서 확산에 의한 이온의 이동도는 매우 좋은 반면 슬래그 양이 적어 방사성 핵종과 결합하여 산화알루미늄 화합물로 포집할 수 있는 능력이 적기 때문에 전체 제거 효율은 감소하는 결과를 보인 것으로 판단된다. 이는 생성된 슬래그 단위 질량당 포함

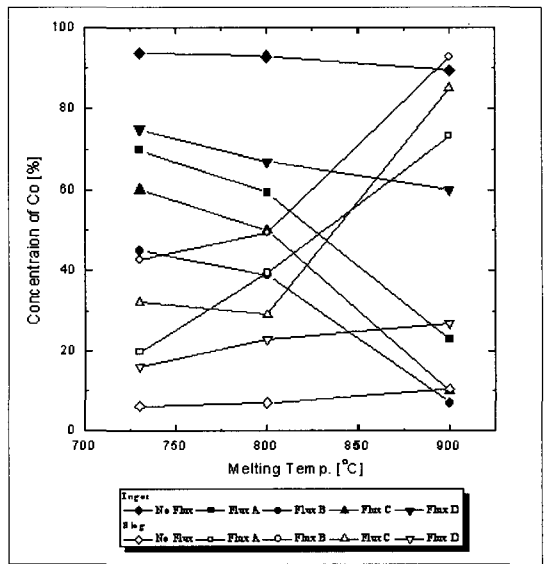


Fig. 7. Effect of the melting temperature on the distribution of cobalt in the ingot and slag phase.

된 모의 방사성 핵종의 분석 결과를 보면 확연히 알 수 있으며, 유동성이 좋은 플럭스의 경우에 Co 농도가 그렇지 않은 경우보다 2 ~ 3배 정도 더 높게 나타났다. 이로부터 방사성 핵종을 제거하기 위해서는 용융체와 슬래그의 유동성도 중요하지만, 슬래그의 발생량도 매우 중요한 인자임을 확인할 수 있다. Gräner 등[6]은 알루미늄 재질의 연구용 원자로, manipulator, 절연 매트 등의 폐기물을 NaCl-KCl-CaF₂로 구성된 염을 이용한 용융을 통하여 Cs과 Co의 제염특성에 대한 연구를 수행한 결과, “Co을 쉽게 슬래그 상으로 이동시켜 높은 제염효율을 얻었다고 발표하였다.

Fig. 8은 주괴와 슬래그 상에서의 Cs의 분배 특성을 나타낸 결과로 용융온도가 증가함에 따라 주괴에서의 Cs의 농도는 약간 감소하는 경향을 나타낸 반면에 슬래그에서는 용융온도가 증가함에 따라 Cs의 농도가 증가하다가 800 °C 이상에서는 증가하는 폭이 매우 작아지는 경향을 보여주고 있다. 이러한 결과는 상대적으로 용융온도가 낮은 영역에서는 용융온도가 증가함에 따라 산화알루미늄으로 구성된 슬래그의 발생량이 많아지고 이에 따라 Cs을 포집할 수 있는 능력이 증가되기 때문에 용융온도가 증가함에 따라 슬래그내의 Cs 농도가 증가하는 것이다. 그러나 그림에서 볼 수 있듯이 용융온도가 더욱 증가하면 슬래그

의 발생량이 보다 많아짐에도 불구하고 슬래그에 포집되는 Cs의 양이 선형적으로 증가하지 않고 일정해 지는데 이는 슬래그로 이동한 Cs이 고온에 의해 다시 슬래그 상에서 대기중으로 분진이나 증기로 배출되면서 Cs의 농도가 감소하기 때문이다.

용융온도가 증가함에 따라 주괴와 슬래그에서 Sr의 농도변화를 Fig. 9에 나타내었다. 그림에서 볼 수 있듯이 용융온도가 증가함에 따라 Sr의 제거 양상은 Co와 Cs의 중간 특성을 나타내었다. 실험에 참가한 대부분의 모의 핵종이 주괴와 슬래그에서 검출된 Co의 경우와 매우 소량만이 주괴에 분배되고 일부는 슬래그에 존재하며 많은 부분이 분진이나 증기로 배출된 Cs의 경우와 비교할 때 Sr은 용융온도에 따라 편차가 있지만 대부분이 슬래그와 분진에 분포되어 있고 일부가 주괴에 잔류함을 알 수 있었다. 이는 반휘발성(semi-volatile) 핵종인 Sr의 특성으로 Sr의 경우에는 850 °C 이하에서는 증기압이 낮아 쉽게 증발되지 않는다. 그러나 본 실험에서는 플럭스의 첨가에 의해 알루미늄과 다른 화합물의 용융온도가 강하여 비교적 낮은 온도에서도 쉽게 휘발됨을 확인할 수 있었다.

Fig. 10은 각 상에 대한 Co, Cs 및 Sr의 분배 특성을 나타낸 그림으로서 앞에서 설명하였듯이 Co는 대부분이 주괴와 슬래그 상에 잔류하고 매우 미량만이

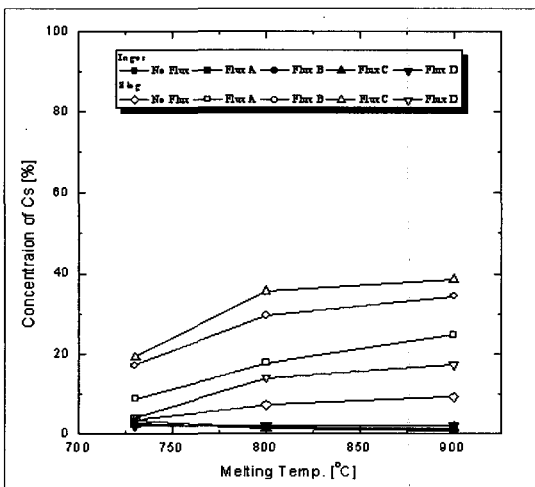


Fig. 8. Effect of the melting temperature on the distribution of cesium in the ingot and slag phase.

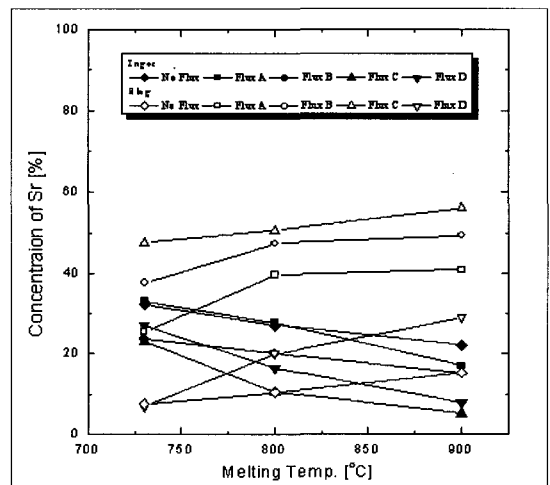


Fig. 9. Effect of the melting temperature on the distribution of strontium in the ingot and slag phase.

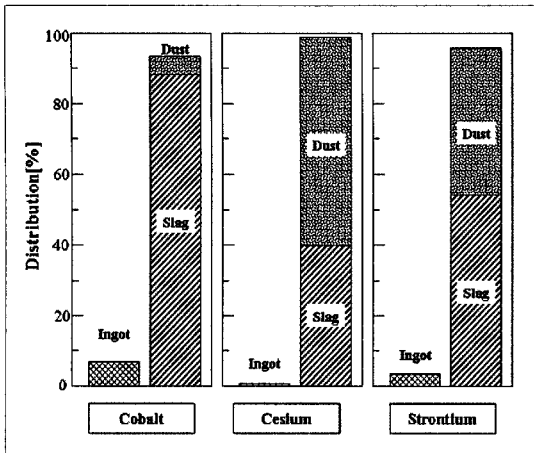


Fig. 10. Characteristics of the distribution for the nuclides in the each phase.

분진으로 배출됨을 알 수 있다. 휘발성이 매우 강한 Cs은 주괴에 매우 적은 양만 분배되고 나머지는 모두 슬래그와 분진으로 이동함을 확인할 수 있다. 이는 금속 용융 시 Cs이 분배되는 경향과 일치하는 것으로 금속 용융 시 Cs이 분배되는 경향과 일치하는 것으로 Cs으로 오염된 알루미늄이나 탄소강 그리고 스테인레스강과 같은 금속 폐기물을 용융처리에 의해 쉽게 제염할 수 있을 것으로 판단된다. 마지막으로 반휘발성인 Sr은 대체적으로 각 상에 골고루 분포함을 알 수 있다.

알루미늄 용융실험에 의해 실험 범위 내에서 얻어진 모의 핵종의 제염계수를 Table 2에 나타내었다. 표에서 보는 바와 같이 휘발성 핵종인 Cs이 가장 높은 제염계수를 나타내었으며, 그 다음이 Sr으로 나타났다. Co는 가장 제염하기 어렵다는 것을 본 실험 결과로부터도 알 수 있었으나 문헌에 나타난 탄소강이나 스테인레스강과 같은 금속 용융에서의 제염계수 보다는 매우 높게 나타남을 확인할 수 있었다.

Table. 2. The decontamination factor of the nuclides obtained from aluminum melting test.

Nuclides	Decontamination Factor
Co	1.33 ~ 14
Cs	30 ~ 130
Sr	3 ~ 25

V. 결론

원자력 연구시설의 해체 시에 발생하는 알루미늄 폐기물의 용융기술을 확립하기 위해 기초단계로 전기로에서 여러 가지 조작변수에 따른 알루미늄의 용융실험을 통하여 다음과 같은 결론의 얻을 수 있었다.

(1) CaF₂와 NaCl, NaF, KF로 구성된 플럭스는 알루미늄 용융 시 유동성의 측면에서는 불리한 반면에 방사성 핵종을 포집할 수 있는 슬래그의 발생량이 많아 다른 플럭스보다 제염의 측면에서 매우 유리한 것으로 나타났다.

(2) 전체적으로 슬래그의 발생량은 용융온도와 용융시간이 증가할수록 증가하는 경향을 보였으며, 유동성이 상대적으로 좋은 플럭스를 첨가한 실험에서는 어느 정도 증가하다가 일정해지는 반면에 유동성이 좋지 못한 플럭스의 첨가 실험에서는 선형적으로 계속 증가하는 경향으로 유동성에 따라 다소 다른 경향을 나타내었다.

(3) Co는 반응온도가 증가함에 따라 주괴 상에서는 감소하는 경향을 나타낸 반면에 슬래그 상에서는 증가하는 경향을 보였으며, 실험조건에 따라 90% 이상 주괴에서 슬래그로 이동함을 확인할 수 있었고, 휘발성이 강한 Cs과 Sr의 경우에는 첨가한 핵종의 대부분이 슬래그 상으로 이동함으로써 매우 높은 제염계수를 얻을 수 있었다.

참고 문헌

- [1] K.L. Hopkinson, A. Bishop, M.T. Cross, J. Harrison and F. Selgas, "Recycling and reuse of radioactive material in the controlled nuclear sector", EUR18041 EN, European Commission (1998).
- [2] J.K. May and S.D. Wahnschaffe, "Engineering study for a melting, casting, rolling and fabrication facility for recycled contaminated stainless steel", WINCO-1189, January (1994).
- [3] S. Frigren, "Recommended radiological protection criteria for the recycling of metals from the

- dismantling of nuclear installations”, Radiation Protection 89, European Commission (1998).
- [4] S.K. Park and K.H. Jung, “Treatment for Dismantled Radioactive Solid Waste from the TRIGA Mark II & III”, Korea Atomic Energy Research Institute, KAERI/TR-1341/99 (1999).
- [5] W.Z. Oh, C.H. Jung, W.K. Choi, H.J. Won and G.N. Kim, “Decontamination Technology Development for Nuclear Research Facilities”, Korea Atomic Energy Research Institute, KAERI/RR-2416/2003 (2003).
- [6] K.-H. Gräner, H. Beyer, H. Westermann, “Melting Aluminium and Copper on Laboratory and Industrial Scale”, Proceeding of Technical seminar on melting and recycling of metallic waste materials from decommissioning of nuclear installations, European Commission, Germany, pp. 209-224 (1993).
- [7] H. Bosse, M. Sappok, H. Westermann, W. Dümpelmann and H. Steiner, “Separation of Metals by Melting”, Proceeding of Technical seminar on melting and recycling of metallic waste materials from decommissioning of nuclear installations, European Commission, Germany, pp. 225-236 (1993).
- [8] V. Adams, W. Murphie, M. Gresalfi, “Recycle and reuse of radioactive scrap metals within the department of energy”, Proceeding of conference on safewaste, pp. 115-124 (2000).
- [9] M.R.B. Joanna, “Melt decontamination of radioactive stainless steel by electroslag remelting”, Dissertation of Doctor Philosophy, Oregon Graduate Institute of Science & Technology, USA (1996).
- [10] B. Heshmatpour, G.L. Copeland and R.L. Heestand, “Decontamination of transuranic contaminated metals by melt refining”, Nuclear and Chemical waste management, vol 4, pp. 129 (1983).
- [11] W.K. Choi, P.S. Song, B.Y. Min, H.I. Kim, C.H. Chong and W.Z. Oh, “A state of the art on the technology for melting and recycling of the radioactive metallic wastes”, Korea Atomic Energy Research Institute, KAERI/AR-716/2004 (2004).
- [12] G. Imbard and S. Rigaud, “Melting of Cs-contaminated ferritic steel from G2/G3 reactors, Marcoule”, Proceeding of Technical seminar on melting and recycling of metallic waste materials from decommissioning of nuclear installations, European Commission, Germany, pp. 193-208 (1993).
- [13] M. Sappok, G. Lukacs and A. Ettemeyer, “Melting of radioactive scrap from nuclear installations”, Proceeding of an international conference on Decommissioning of nuclear installations, Commission of the European Communities, Brussels, Belgium, pp. 482-493 (1989).
- [14] S. Menon, G. Hernborg and L. Andersson, “Melting of low-level contaminated steels”, Proceeding of an international conference on Decommissioning of nuclear installations, Commission of the European Communities, Brussels, Belgium, pp. 497-503 (1989).