

## 방사성 금속폐기물의 용융시 방사성 핵종( $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ )의 분배특성

민병연 · 최왕규 · 오원진 · 정종현 · 강 용<sup>\*†</sup>

한국원자력연구소  
305-353 대전시 유성구 덕진동 150  
\*충남대학교 화학공학과  
305-764 대전시 유성구 궁동 220  
(2007년 5월 15일 접수, 2007년 7월 3일 채택)

## Distribution Characteristics of Radionuclides ( $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ ) During the Melting of Radioactive Metal Waste

Byung Youn Min, Wang Kyu Choi, Won Zin Oh, Chong Hun Jung and Yong Kang<sup>\*†</sup>

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duckjin-dong, Yusung-gu, Deajeon 305-353, Korea

\*School of Chemical Engineering, Chungnam National University, 220 Gung-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-764, Korea

(Received 15 May 2007; accepted 3 July 2007)

### 요 약

원자력 시설 해체시 발생되는 금속성 폐기물의 용융 제염을 위한 기초 연구를 위해 아크 용융로를 사용하여 스테인레스강과 탄소강의 금속 폐기물 용융시 슬래그 종류, 농도, 염기도에 따라  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  핵종의 주괴, 슬래그, 분진 상으로 분배 특성을 살펴보았다.  $^{60}\text{Co}$ 은 90% 이상 주괴상에 균질하게 분포되었으며, 슬래그 상에는 약 10% 미만으로 잔존하며 슬래그 조성에 따라 분배특성이 크게 영향을 받지 않았으나, 유동성이 좋은 염기성 슬래그 형성제가 포함된 슬래그에서는 영향을 받음을 알 수 있었다.  $^{137}\text{Cs}$ 는 스테인레스강과 탄소강의 용융체로부터 완전히 제거되어 슬래그상과 분진상 상으로 분배됨을 알 수 있었다.

**Abstract** – A fundamental study on the melt decontamination of metal wastes generated by dismantling the nuclear facility, the melting of metal wastes such as stainless steel and carbon steel have been carried out to investigate the distribution phenomena of the radioisotopes such as  $^{60}\text{Co}$  and  $^{137}\text{Cs}$  into the ingot, slag and dust phases by using the various slag types, slag concentration and basicity in an arc furnace. The  $^{60}\text{Co}$  remained homogeneously in the ingot phase above 90 % and it was barely present in the slag below 10 %. The effect of the slag composition on the distribution for Co-60 was not considerable, but a basic slag former with high fluidity showed effective.  $^{137}\text{Cs}$  was completely eliminated from the melt of the stainless steel as well as the carbon steel and distributed to the slag and the dust phase.

Key words: D.C Arc Melter, Metal Melting, Slag, Radionuclides

### 1. 서 론

금속성폐기물의 제염방법에는 용융제염, 화학제염, 전해제염, 초음파제염, 진동연마법 등 다양한 방법이 있으나, 방사성 금속 폐기물의 효과적인 제염방법으로 용융제염이 최근 전 세계적으로 각광을 받고 있다. 용융에 의한 방사성 금속폐기물 제염 개념은 주로 금속 표면에 오염된 방사성핵종을 용융 시 첨가한 슬래그에 주로 산화물 형태로 포집시켜 주괴에서 방사성핵종을 제염하는 기술과 비균질적으로 금속폐기물 표면에 오염된 핵종을 주괴에 균일하게 배분시켜 전류 오염도 측정을 손쉽게 하는 기술로 대별된다. 금속용융 기술은 다른 처리방법에 비해 부피 감용비가 클 뿐만 아니라, 휘

발성 핵종이나 우라늄(U)과 같이 모재 금속과 반응성이 적은 핵종은 규산염, 인산염, 봉산염, 할로겐화물 등을 함유하고 있는 무기물질의 혼합물인 슬래그(slag)에 의해 안정화 되어 제염되며, 용융 후 최종적으로 재사용이 가능한 금속 주괴(ingot)를 생산하여 유용한 자원을 재활용 할 수 있으며, 휘발되지 않는 방사성 핵종들은 용융 금속의 결정격자 내에 방사성 핵종을 고정화시켜 비방사능을 낮출 수 있다는 장점을 가지고 있다[1-6]. 용융기술은 전기, 가스, 코크스, 산소 등의 여러 가지 에너지원이 사용되고 있는데, 이중 전기 용융방식은 아크 방전으로 용융하는 방식으로 고로·전로법에 비하여 설비 투자액이 낮고, 생산의 유연성이 높으며, 수요 또는 생산품의 변동에 대해 용이하게 대응할 수 있으나, 방사성 핵종에 의해 내화재의 오염과 고온에서 슬래그와의 반응으로 인한 침식으로 주기적으로 교체가 필요하며, 이로 인해 2차폐기물이 발생하는 단점을 가

<sup>†</sup>To whom correspondence should be addressed.  
E-mail: kangyong@cnu.ac.kr

지고 있다. 원자력 시설을 가지고 있는 선진국들은 해체시 발생되는 금속폐기물에 대한 고감용율, 제염효과, 금속의 재사용 가능성 및 안전성 등에 대한 평가를 수행한 경험을 가지고 있다. 독일은 Krefeld의 Siempelkamp에서는 특별히 설계된 용융로를 사용하여 차폐재나 이송 캐스크(cask)의 제조와 같은 원자력분야에서 재활용하였고[7], 프랑스에서는 해체중인 G2/G3 원자로 부지 내에 15톤의 아크로를 사용하여 해체 시 발생하는 금속폐기물을 용융 제염을 수행한 경험을 가지고 있다[8]. 고온용융 기술에 상당한 기술력을 가지고 있는 미국의 Savannah River[9]와 INEEL 연구소[10]에서는 현재 매립되어 있는 방사성 금속 폐기물 처리에 심혈을 기울이고 있으며, 스웨덴의 Studsvik에서는 1988년말 까지 400톤 이상의 저준위 금속폐기물을 용융 제염하였다[11]. 영국의 British steel corporation (BSC)에서는 용융제염[12]을 통해 금속을 재사용하고 있으나, 아직 국내에서는 방사성 금속폐기물의 용융제염 기술은 거의 전무한 실정이며, 타당성 조사에만 국한되어 있다. 아크 용융방식을 사용하여 방사성 금속 폐기물의 용융제염 실험은 대부분 비방사성원소를 사용한 핵종들의 분배 특성에 머무르고 있으며, 이는 실제 폐기물에 오염되는 있는 핵종의 물리화학적 형태가 상이하여 정확한 거동특성을 고찰하기에는 미흡하다. 특히 대부분의 방사성 핵종은 자연 상태에 흔히 존재하지 않는 물질이므로 용융제염의 이론적 고찰에 필요한 물리화학적 데이터베이스(database)가 많지 않아 실험적 방법으로 접근할 수 밖에 없다.

따라서, 본 연구에서는 금속 용융기술의 기본적인 기초 원리를 파악하고, 원자력 연구시설의 해체 시 발생하는 여러 가지 금속성 폐기물에 대한 용융기술을 수립하고자 하였다. 이를 위해 아크로에서 연구용 원자로인 TRIGA II, III의 해체 현장에서 발생된 실제 폐기물과 조성이 같은 금속시편에  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ 의 방사성동위원소(radioisotope)의 오염도와 슬래그의 조성, 농도, 종류를 변화시켜 가면서 핵종과 슬래그 사이의 상호작용에 의한 동위원소의 분배특성과 방사성 폐기물의 용융기술에서 중요한 요소 중의 하나인 주괴상에서의 방사성 핵종의 균질화 특성을 살펴보았다.

## 2. 실험방법 및 분석

### 2-1. 설비 장치

본 연구에 사용된 실험 장치는 폭이 1.2 m이고 높이가 2.2 m이며, 처리용량은 최대 10 kg/Batch인 직류 아크 시스템 용융로로써 장치 개략도는 Fig. 1과 같다. 상부의 1개의 흑연전극과 하부에 1개의 동관 기저전극, 장·탈착이 자유로운 동(copper) 도가니, 최대 150 kW DC 전원을 제공할 수 있는 공급 시스템과 전극봉 상·하 구동 모터, 유압시스템, 진공 시스템으로 구성되어 있다. 하부 기저 전극 역할을 수행하는 수냉식 동 도가니(water-cooled copper crucible)는 장·탈착이 가능하도록 되어 있어 운전 시 신속하고 원활하게 도가니를 핸들링 할 수 있으며, 필요시 동 도가니 내에 여러 가지 형태의 도가니를 장착하여 실험이 가능한 구조로 되어있다. 장치의 전극과 챔버(chamber)는 이중 자켓(jacket)으로 구성되어 냉각수를 공급함으로서 시스템의 안정을 유지 하도록 하였다. 상부전극과 하부전극 위에 놓여있는 흑연도가니와의 순간 접촉에 의해 아크를 발생시켜 금속 폐기물을 용융시킨다. 정상 운전시 전극봉 구동장치의 스텝페 모터에 의해 아크 열의 길이 및 운전형태를 자유로이 조절하여 안정하게 유지할 수 있다. 상부에는 용융로 내부를 육안으로 확

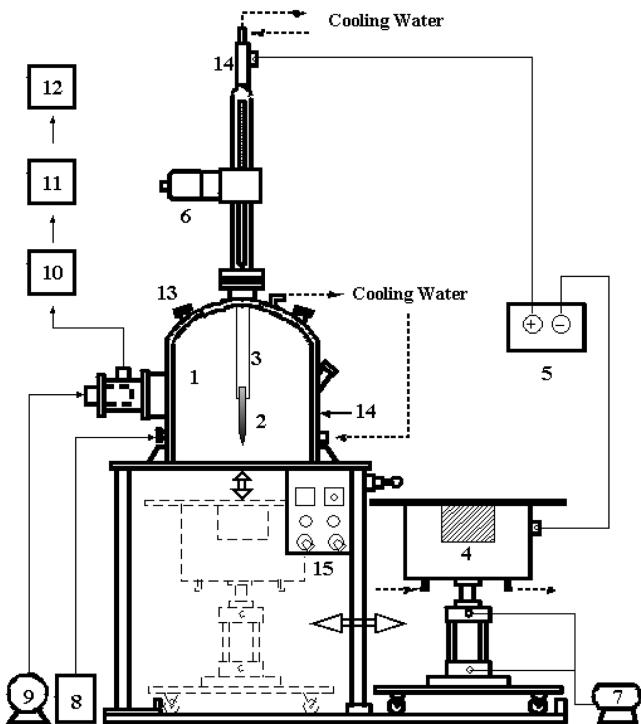


Fig. 1. Schematic of the electric arc furnace.

- |                       |                          |
|-----------------------|--------------------------|
| 1. Reactor chamber    | 9. Vacuum pump           |
| 2. Graphite electrode | 10. Filter bank          |
| 3. Copper electrode   | 11. Emission monitor     |
| 4. Copper crucible    | 12. Radiation monitor    |
| 5. Power supply       | 13. Viewport             |
| 6. Stepper motor      | 14. Cooling water jacket |
| 7. Air compressor     | 15. Control box          |
| 8. Argon gas          |                          |

인할 수 있도록 챔버에 3개의 포트가 설치되어 있으며, 측면에는 노내 분위기를 자유로이 조절할 수 있도록 진공 시스템과 불활성 가스(inert gas)를 주입할 수 있다. 필터 시스템은 Prefilter-HEPA-Charcoal-HEPA 필터로 구성되어 있어 입자상 배기ガ스를 완전 처리 할 수 있도록 하였다.

### 2-2. 실험 방법 및 분석

실험에 사용된 시편은 원자력 시설에서 일반적으로 쓰이는 SUS 304L과 탄소강을 택하였다. 두께가 1 mm인 SUS 304L과 탄소강 금속판을 10 mm × 10 mm의 크기로 준비하여 SUS 304L 실험에서는  $^{60}\text{Co}$ -54 Bq/g,  $^{137}\text{Cs}$ -39 Bq/g로, 탄소강 실험에서는  $^{60}\text{Co}$ -62 Bq/g,  $^{137}\text{Cs}$ -39 Bq/g로 500 g의 금속 시편을 오염시켜 흑연 도가니에 장입한 후, 슬래그 조성, 염기도, 슬래그의 조합에 따른 최적 용융제염 조건을 확립하기 위한 실험을 수행하였다. 용융실험 조건은 Table 1에 수록하였다. 금속 용융체와 슬래그의 충분한 혼합이 이루어지는 시점에 도달하면 용융된 금속 용융체는 동으로 제작된 몰드에 부어 주괴로 제조하였으며, 금속 용융체의 하부에 존재하는 슬래그는 10 ml 용량의 표준 원통 시료용기에 분말 형태로 일정량을 채취한 후 고순도 게르마늄(Ge) 검출기가 장착된 MCA (multi channel analyzer)를 사용하여 방사능 농도를 측정하였다. 배기ガ스는 대기중 배출되기 전에 연속공기감시기(continuous emission monitoring)와 방사선량측정기(radiation monitoring system)를 거쳐 배출시켰다.

**Table 1. The test condition for the melting of contaminated metal waste**

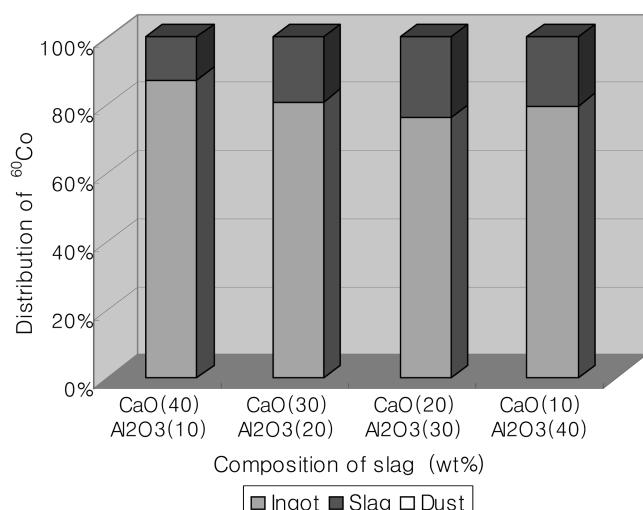
Specimen	Slag composition (%)				Basicity
	$\text{SiO}_2$	$\text{CaO}$	$\text{Al}_2\text{O}_3$	Others	
SUS 304L*	50	30	20		0.52
	40	40	20		0.82
	30	50	20		1.28
	10	50	40		1.59
SUS 304L*	No slag				
	40	10			
	30	20	$\text{CaF}_2$		-
	20	30	(50)		
	10	40			
Carbon steel**	50	30	20	-	0.52
	40	40	20	-	0.82
	30	50	20	-	1.28
	10	50	40	-	1.59
Carbon steel**	30	40	10	$\text{Fe}_2\text{O}_3(20)$	-
	80	4	2	$\text{B}_2\text{O}_3(14)$	-
	38.1	41.1	14.1	$\text{Fe}_2\text{O}_3(2.9)$ $\text{MgO}(3.8)$	-
	No Slag				

\*spiked radioisotope :  $^{60}\text{Co}$ -54 Bq/g,  $^{137}\text{Cs}$ -39 Bq/g\*\*spiked radioisotope :  $^{60}\text{Co}$ -62 Bq/g,  $^{137}\text{Cs}$ -39 Bq/g

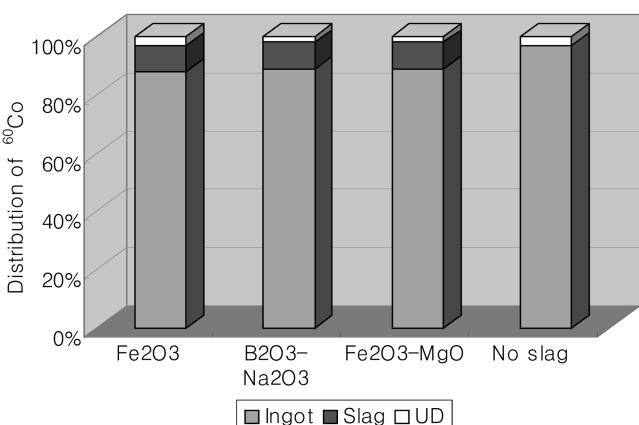
### 3. 결과 및 고찰

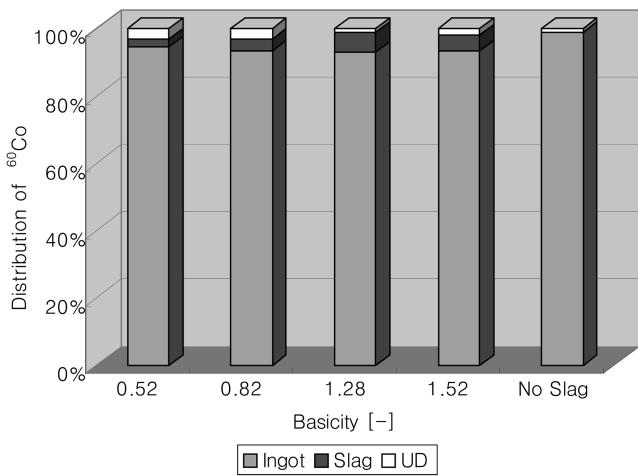
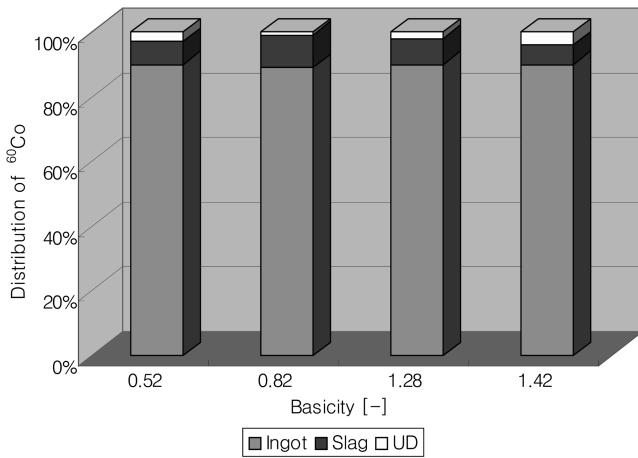
#### 3-1. $^{60}\text{Co}$ 거동 특성

슬래그 종류와 염기도를 변화시켜 가면서 금속 철 용융제염시  $^{60}\text{Co}$  핵종의 분배특성을 살펴보았다. Fig. 2는 슬래그 형성제를 변화시켜 가면서 탄소강에서의  $^{60}\text{Co}$  분배특성으로, 산화력이 강한 슬래그를 첨가하였을 경우 슬래그 상으로의 분배율이 더 높게 나타남을 알 수 있었다. Fig. 3은  $\text{CaF}_2$ - $\text{CaO}$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ 로 구성되어 있는 슬래그에서의  $^{60}\text{Co}$  분배특성으로, 그림에서 보는 바와 같이 주괴상에 존재할 것으로 예상되었던  $^{60}\text{Co}$  핵종이 산화물을 형성하여 슬래그 상으로 분배되는 경향을 보여주었다. Nakamura와 Fujiki[13]는 500 kg의 공기유도로에서 탄소강과 스테인레스강을 용융시켰을 때 주괴에는  $^{60}\text{Co}$ 만이 검출되었고, Schuster와 Haas[14]는 실험실적 용융실험에서  $^{60}\text{Co}$ 가 주괴에서 99.8%, 슬래그와 에어로졸 필터에서 0.2%를 검출한 실험 결과보다 더 많은 양의  $^{60}\text{Co}$  핵종이 슬래그 상으로 분

**Fig. 3. The distribution of  $^{60}\text{Co}$  with  $\text{CaF}_2$ - $\text{CaO}$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  slag in SUS 304L.**

배되어 제거되는 특성을 보였다. 이는 슬래그 상에 존재하는  $\text{CaF}_2$ 는  $^{60}\text{Co}$  핵종과 슬래그의 반응을 촉진시킬 수 있도록 슬래그의 유동성, 전기전도도, 점도, 자유이온의 생성, 산화력의 특성을 변화시켰기 때문이다. 일반적으로  $\text{CaF}_2$ 는  $\text{SiO}_2$ 의 사슬구조를 끊어  $^{60}\text{Co}$ 와 반응할 수 있는 반응 사이트를 제공하며, 슬래그의 용융온도와 점도를 낮추는 역할을 동시에 수행 한다. Predominance area diagram으로도 잘 알려진 켈로그 도표(kellogg diagram)에 의하면 코발트 원소는 높은 온도에서 fluorides, sulfides, oxy sulfides, oxyaluminates로 존재한다[15-17]. 본 실험에서  $^{60}\text{Co}$ 는 fluorides, oxyaluminates와 화합물을 형성하여 금속으로부터 슬래그 상으로 이동하여 제거됨을 알 수 있었다. 금속폐기물에 오염된 핵종의 효과적인 제거를 위해서는 슬래그에 존재하는 이온과 핵종에 의해 형성되는 화합물의 형태에 따라 좌우되는 것으로 판단된다. 일반적으로 슬래그의 구성성분은 이를 내의 화학적 성분 거동에 따라 염기성 산화물( $\text{CaO}$ ,  $\text{MnO}$ ,  $\text{FeO}$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$ ), 산성 산화물( $\text{SiO}_2$ ,  $\text{P}_2\text{O}_5$ ), 중성 산화물( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ), 염( $\text{CaF}_2$ ,  $\text{Na}_2\text{AlF}_6$ (cryolite),  $\text{CaS}$ )으로 나눌 수 있다. 화학적 거동은 염기성 산화물에 대한 산성 산화물 성분의 비율에 따라 정해지는데, 이를 염기도라 한다. 염기도는 금속 용융 기술에서 슬래그를 제어하는데 매우 중요한 변수로서 염기도에 의해 슬래그의 유동성 및 슬래그의 용융온도가 변화한다. Fig. 4와 Fig. 5에 SUS 304L, 탄소강을 사용하여 염기도에 따른  $^{60}\text{Co}$ 의 거동 특성을 고찰한 결과를 도시하였다. Fig. 4는 SUS 304L 용융 실험으로서 슬래그에 10% 정도의  $^{60}\text{Co}$ 가 포집되었으며, 염기도가 낮은 0.52, 0.82보다는 1.28과 1.52의 높은 염기도에서 더 많은  $^{60}\text{Co}$ 가 슬래그 상으로 분배되는 특성을 보여주었다. 탄소강 실험(Fig. 5)에서도 SUS 304L 실험과 매우 유사한 결과를 나타내었으나, 탄소강에서 더 많은  $^{60}\text{Co}$ 가 슬래그 상으로 분배되었으며, 슬래그 조성, 종류에 따른 용융실험 변수에 크게 좌우되지 않고 90% 이상이 주괴에 균질하게 분포됨을 보여주었다. 이는 탄소강 모재에 포함되어 있는 탄소 참여 반응과 Co는 Fe보다 Gibbs free energy가 더 낮아 선택적으로 슬래그와 반응하기 때문이다.  $^{60}\text{Co}$ 의 제염 특성은 슬래그의 조성에 크게 좌우되지 않은 것으로 판명되었으나 플루오르가 함유된 슬래그와 염기성 슬래그, 산화력이 높은 슬래그 상에서는 슬래그 코발트 플루오르 화합물의 형성, 유동성 및 산화 포텐셜에 의해 다른 슬래그 보다 더 우

**Fig. 2. The distribution of  $^{60}\text{Co}$  on slag former in carbon steel.**

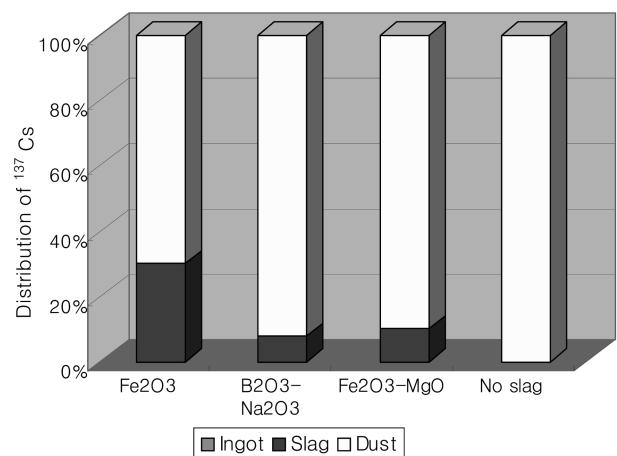
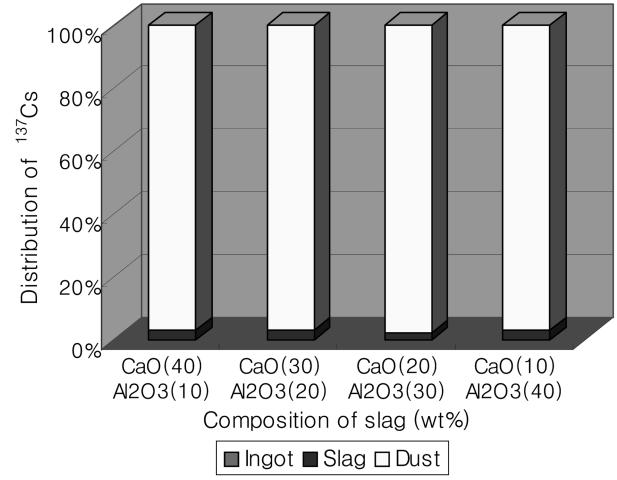
Fig. 4. The distribution of  $^{60}\text{Co}$  on the basicity in SUS 304L.Fig. 5. The partitioning of  $^{60}\text{Co}$  on the basicity in carbon steel.

수한 포집율을 보였다. 만약  $^{60}\text{Co}$ 가 모재 표면에 오염되어 있다면 용융시 슬래그상으로의 이동 가능성이 높으며, 이때 플루오르 함유 슬래그와 염기성 또는 산화력이 우수한 슬래그를 사용하면 훨씬 효과적인 제거가 이루어질 것으로 사료된다. 이처럼 다양한 화학적 물리적 특성, 용융로내의 조성, 슬래그 조성, 핵종들의 중기압, 산화물의 밀도, 용융온도, 용융 실험 방법에 따라 그 분배특성이 다양하기 때문에  $^{60}\text{Co}$ 의 분배특성을 규명하는 것은 상당히 복잡하면서 어려운 공정이나,  $^{60}\text{Co}$ 는 특정 조건에서 슬래그 상으로 분배되며, 이와 동시에 금속 형태(metallic form)으로 전환되어  $^{60}\text{Co}$  형태로 만이 금속상에 존재함을 알 수 있었다.

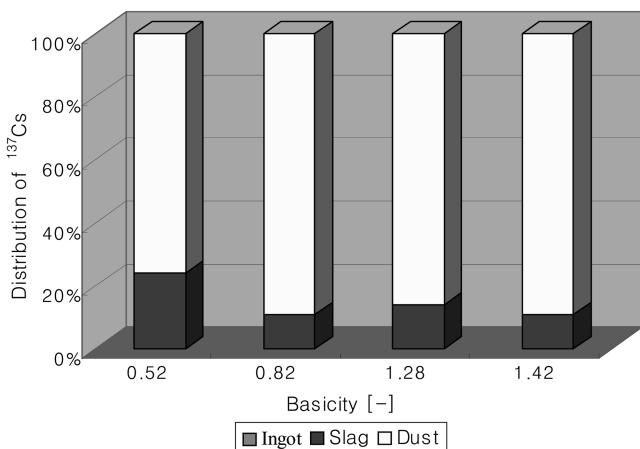
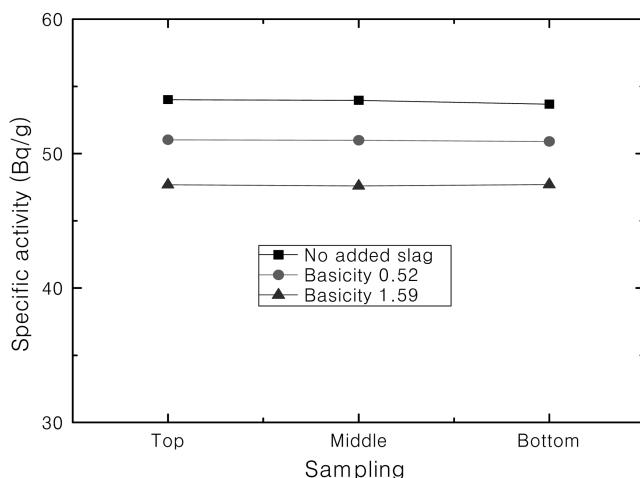
### 3-2. $^{137}\text{Cs}$ 거동 특성

$^{137}\text{Cs}$ 는 원자로에서 발생되는 핵분열 물질로서 원자력 관련 시설에 광범위하게 존재함에 따라  $^{137}\text{Cs}$  핵종의 분배 특성을 고찰하였다.

Fig. 6은 슬래그 형성제를 변화시켜 가면서 슬래그 10 wt%를 사용하여 탄소강에서의  $^{137}\text{Cs}$ 의 분배 특성으로 그림에서 보는 바와 같이  $^{137}\text{Cs}$ 의 주괴로부터 완전히 제거되어 슬래그 상과 분진 상으로 분배됨을 보여주고 있다. Larsen[18]은 special power excursion reactor test(SPERT) III로부터 오염된 금속 조각을 용융시 약 5~10%의 Cs가 SUS 304L 주괴상에 분포된다고 보고하였는데, 본 실험에

Fig. 6. The distribution of  $^{137}\text{Cs}$  on the slag type in carbon steel.Fig. 7. The distribution of  $^{137}\text{Cs}$  with  $\text{CaF}_2\text{-CaO-Al}_2\text{O}_3$  slag in SUS 304L.

서는 산화력이 강한 슬래그인  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 를 첨가하였을 경우 슬래그 상으로 20% 이상이 분포됨을 알 수 있었다. Fig. 7은  $\text{CaF}_2\text{-CaO-Al}_2\text{O}_3$ 로 구성되어 있는 슬래그를 사용하여  $^{137}\text{Cs}$  거동 특성을 알아보았다. 그림에서 보는 바와 같이 대부분의  $^{137}\text{Cs}$ 는 용융체로부터 휘발되어 분진 상으로 이동하여 제거됨을 알 수 있었다. 금속폐기물에 오염된 핵종의 효과적인 제거를 위한 슬래그의 능력은 슬래그에 존재하는 이온과 핵종에 의해 형성되는 화합물의 형태에 따라 좌우됨을 알 수 있었다. Fig. 8에 탄소강에 용융시 염기도에 따른  $^{137}\text{Cs}$ 의 분배 특성을 도시하였다. Harvey[19]는 염기성 슬래그를 사용하여 전기아크로에서 용융실험 결과 슬래그내에 Cs를 포집하는 데 별 도움이 되지 않는다는 결론을 내렸다. 그러나 본 실험에서  $^{137}\text{Cs}$ 는 주괴상에서 전량 휘발되지 않고 염기도가 가장 낮은 즉, 유동성이 가장 작은 슬래그에서 더 높은 포집율을 보여주었다. 이는 철 금속 용융시 항상  $^{137}\text{Cs}$ 는 휘발되어 제거된다는 열역학적 특성과 정확히 일치하지 않음을 보여주고 있다.  $^{137}\text{Cs}$ 는 슬래그 조성, 용융온도, 운전 기술에 따라 슬래그상과 분진 상으로 이동함을 의미하며, 슬래그 화학조성이  $^{137}\text{Cs}$ 의 제거 효과를 높일 수 있는 중요한 인자임을 알 수 있었다.  $^{137}\text{Cs}$ 의 슬래그 상에서 높은 포집율을 위해서는 온도 및 노내 분위기 물질의 종류와 함량을 조절하여 슬래그에  $\text{Cs}_2\text{SiO}_3$ 와 같은 안정한 화합물로 슬래그 상으로의 분배율을 높이기 위한 운전조건을 모색하여야 할 것이다.

Fig. 8. The distribution of  $^{137}\text{Cs}$  on the basicity in carbon steel.Fig. 9. Homogeneous distribution of the  $^{60}\text{Co}$  in the ingot phase.

### 3-3. 핵종의 균질화 특성

오염된 제염대상 장치 부품은 흔히 구조가 복잡해서 내부표면상의 방사능 준위와 정확한 오염 위치 감별이 어렵고, 시간이 많이 소요되며, 모니터링(monitoring) 가격 또한 비싸다. 일반적으로 환경방출 기준 수준의 제염을 위해서는 제염 후 잔류방사능이 자연방사능 보다 더 낮아야 하기 때문에 잔류방사능 측정에 시간과 비용이 많이 듈다. 또한 잔류 방사능이 균일하지 않을 경우에는 더 많은 계측과 더 엄격한 허용기준이 요구된다. 그러나 용융 후 표면 오염된 방사능은 주괴 내에 균질하게 분포되어 방사능 준위의 측정을 쉽게 할 뿐만 아니라 정확한 방사능 준위를 알 수 있어 처분시나 재사용을 위한 방출시 일반 대중에 대한 위험 경감과 신뢰성을 향상을 가져온다. 또한 균일하게 고정화된 금속 주괴의 침출속도는 금속 조각보다 훨씬 적다. 이를 위해 용융 후에는 표면방사능이 주괴 내에 분산되어 모든 잔류 핵종이 균일하게 분포 및 고정화되어져야 하므로 각 주괴 시료의 위치를 달리하여 시편을 채취한 후 방사능을 측정하였다. SUS 304L 용융실험에서 얻은 주괴를 상중하 3등분하여 얻은 주괴의 위치별 방사능 분포 값은 Fig. 9와 같으며, 상중하의 방사능 분포 값이 표준편차 이내로 고른 분포값을 나타내었다. Cs는 전량 주괴상에서 휘발되어 슬래그와 배기체로 분배되었다. 용융 후 생산되는 주괴는 특성은 슬래그의 염기도 및 조성과 관계가 있었다.

많은 양의  $\text{SiO}_2$ 가 함유되어 있는 슬래그는  $\text{SiO}_2$  특성상 다른 슬래그에 비해 점도가 높아 상대적으로 점성이 강하다. 이에 반대로  $\text{CaF}_2$ 를 함유한 슬래그는 점도가 낮아 주괴 제조시 용융물과 함께 주괴로 혼입되나 주괴 표면을 덮어 쉽게 제거되는 우수한 형태의 주괴를 생산됨을 확인할 수 있었다.

## 4. 결 론

실험실 규모의 아크 용융로를 사용하여 방사성동위원소로 오염된 철 금속(SUS 304L, 탄소강) 폐기물을 사용하여 오염 핵종들의 분배 특성 실험을 수행한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1)  $^{60}\text{Co}$ 는 대부분(95% 이상) 주괴에 잔존하고 제염특성은 염기도에 크게 영향을 받지 않으나,  $^{137}\text{Cs}$ 는 99% 이상 용융체에서 휘발되어 슬래그와 분진 상에 분배되었다.

(2) Ferric oxide와  $\text{CaF}_2$  첨가는  $^{60}\text{Co}$  제염성능과 용융시간 단축 효과가 있었으며, 이것은 슬래그와의 반응성 향상에 기인한 것으로 생각된다. 적절한 슬래그 조성은 기본 슬래그 조성( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CaO}$ ,  $\text{SiO}_2$ )에  $\text{CaF}_2$ 와 Ferric oxide를 첨가한 것이며, 적절한 슬래그 첨가량은 철금속의 10 wt%이다.

(3)  $^{137}\text{Cs}$ 는 슬래그 조성, 용융온도, 운전기술에 따라 모재로부터 완전히 제거되어 전량 휘발되지 않고 슬래그 상에 상당량이 포집되는 것으로 보아 슬래그 화학조성이  $^{137}\text{Cs}$ 의 제염 효과를 높일 수 있는 중요한 인자임을 확인하였으며, 낮은 염기도를 가진 슬래그 조성이 더욱 효과적이다.

## 참고문헌

- Grbener, K. H., Beyer, H. and Westermann, H., "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, 209-224(1993).
- Bosse, H., Sappok, M., Westermann, H., Dmpelmann, W. and Steiner, H., "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, 225-236(1993).
- Eddy, T. L., Ravio, B. B., Solelberg, N. R. and Wiersholm, O., "Advanced Mixed Waste Treatment Project Melter System Preliminary Design Technical Review Meeting," Idaho National Engineering Laboratory, INEL-95/0054(1995).
- Min, B. Y., "Low & Intermediate Level Radioactive Waste Vitrification Using Plasma Arc Melting Technology," *J. Korean Nuclear Soc.*, **35**(5), 482-496(2003).
- Garcia, R. S., "Commercially Available Low-Level Radioactive and Mixed Waste Treatment Technologies," INEL & Lockheed-Martin Technologies Company(1996).
- Min, B. Y., Song, P. S., Ahn, J. H., Choi, W. K., Chong, C. H. and Oh, W. Z., "Melting Characteristic for Radioactive Aluminum Waste in Electric Arc Furnace," *J. Korean Radioactive Waste Soc.*, **4**(1), 33-40(2006).
- Sappok, M. and Graebner, K. H., "Results of Melting Large Quantities of Radioactive Metallic Scrap," Proceedings of the

- International Topical Meeting on Nuclear and Hazardous Waste Management, Spectrum 92, American Nuclear Society, Illinois, 120(1992).
8. Peuive, J., "Dismantling of Nuclear Facilities Scrap Steel Management of Scrap Metal steel Management of G2 and G3 Reactors at Marcoule;" UDIN, Commissariat AL'Energie Atomique, Marcoule, 16(1993).
  9. Jantzen, C. M., Bickford, D. F., Brown, K. G., Cozzi, A. D. and Herman, C. C., "Savannah River Site Waste Vitrification Projects Initiated Throughout the United States," Westinghouse Savannah River Co., Aiken, SC. Department of Energy, Washington, DC(2004).
  10. Barnes, C. M. and Taylor, D. D., "Review of FY 2001 Development Work for Vitrification of Sodium Bearing Waste," Idaho National Engineering and Environmental Laboratory, Idaho Falls, INEEL/EXT-02-00194(2002).
  11. Menon, S., Hernborg, G. and Anderdon, L., "Melting of Low-Level Contaminated Steels," Decommissioning Nuclear Installations-1990, Studsvik AB, Sweden, 497(1990).
  12. Gomer, C. R. and Lambley, J. T., "Melting of Contaminated Steel Scrap Arising in the Dismantling of Nuclear Power Plants," CONF-840524, United Kingdom(1984).
  13. Nakamura, H. and Fujiki, K., "Radioactive Metal Melting Test at Japan Atomic Energy Research Institute," Proceedings Waste Management, 1993, 2, 1688(1993).
  14. Schuster, E. and Haas, W., "Behavior of Difficult to Measure Radionuclides in the Melting of Steel," EUR-12690, Belgium, Elsevier applied Science, 20(1990).
  15. Kellogg, H. H. and Basu, H. K., "The Roasting of Sulfide Ores," *Transactions, AIME*, **218**, 70-80(1960).
  16. Pehlke, R. D. Unit Processes of Extractive Metallurgy, Elsevier, New York(1973).
  17. Roine, A., "SC Chemistry for Windows-Chemical Reaction and Equilibrium Software with Extensive Thermochemical Database, Version 1.10," Outokumpu Research Oy, Pori, Finland(1993).
  18. Larsen, M. M., Davis, J. N. and Logan, J. A., "Sizing and Melting Development Activities Using Contaminated Metal at the Waste Experimental Reduction Facility," EGG-2411 EG&G Idaho, Inc., (1985).
  19. Harvey, D. S., "Research into the Melting/refining of Contaminated Steel Scrap Arising in the Dismantling of Nuclear Installations," EUR-12605, commission of the european communities(1990).