

세슘폐흡착재의 붕규산유리고화체에 대한 내침출성 분석

김종호, 신진명, 전관식, 박장진, 조영현

한국원자력연구소

요 약

석탄화력발전소의 산업부산물인 fly ash를 이용한 폐흡착재의 붕규산유리고화 가능성을 분석하였다. 폐흡착재는 기체상의 세슘이나 루테튬 등을 포집한 후에 발생되는 필터류 등의 고체폐기물을 말하며 본 실험에서는 CsNO₃와 fly ash를 물비로 1.5 : 1 되게 섞어 1200 °C에서 1시간 가소 시킨 후에 생성되는 pollucite를 모의폐흡착재로 사용하였다. 폐흡착재를 무게비 15 ~ 30 %로 fly ash, SiO₂, Na₂CO₃, B₂O₃와 혼합한 후 1150 °C에서 3시간 용융시켜 붕규산유리화시켰다. 제조된 붕규산유리고화체의 침출성을 평가하기 위하여 2일동안의 soxhlet 침출실험을 수행하였다. 한편 폐흡착재의 붕규산유리고화과정을 알아보기 위하여 붕규산유리고화체의 원료물질에 대하여 유리화과정과 동일한 조건하에서 TG/DTA 분석을 수행하였다.

I. 서론

고준위방사성폐기물의 고화체로서 제안된 것으로는 유리, 세라믹, 합성암 (SYNROC, Synthetic Rock), 강화 콘크리트등을 들 수 있다. 그러나 기술적으로 그 유용성이 입증되어 상용화된 것은 유리화이며 이 중에서도 붕규산유리가 적합한 것으로 평가되고 있다¹⁾

핵분열생성물 중 방사선적 위험도가 높고 처분시 타핵종에 비하여 비교적 용출이 잘되는 세슘의 고정화재료로 Komarneni와 Roy 등은 pollucite (CsAlSi₂O₆)가 유리하다고 지적한바 있으며 pollucite는 세슘과 알루미늄실리케이트의 수열반응에 의해 결정화될 수 있으므로 열역학적으로 안정하며 침출저항이 크므로 세슘의 고

정화를 위하여 가장 안정한 재료로 추천되고 있다.

한편 석탄화력발전소 부산물인 석탄회를 이용하여 pollucite형태로 세습을 포함한 폐촉매의 유리고화체를 제조하고자 하였다.

Fly ash는 붕규산유리의 기본구성물질인 실리카 및 알루미늄성분을 평균 85% 이상 함유하고 있으며, 이중 알루미늄은 고준위방사성폐기물 유리고화체의 제조 시 내침출성을 향상²⁾시키는 좋은 특성을 가지고 있으므로 이의 유효이용은 폐기물의 재활용 및 자원화 측면에서 상당히 중요성을 지닌다

따라서, 산업폐기물인 fly ash를 사용하여 제조한 붕규산유리를 세습폐촉매의 고정화물질로 이용할 경우의 붕규산유리고화체의 유리화과정 및 유리고화체의 침출특성을 분석하였다.

II. 실험

1. 시편제조

가. 세습폐촉매 제조

석탄회는 700°C에서 12시간 열처리하여 미연탄소분 등 강열감량 성분을 날려보낸 후 실험에 사용하였다. CsNO₃와 fly ash를 몰비로 1.5 : 1로 혼합하여 1200°C에서 1시간 유지한 후 생성되는 pollucite 형태의 생성물을 폐촉매로 사용하였다. 폐촉매로 사용된 pollucite의 조성을 표 1에 나타내었다.

나. 폐촉매 유리고화체의 제조

폐촉매의 함량을 무게비 15 ~ 30 %되게 표 2와 같은 조성으로 혼합한 후 alumina crucible에 충전시켜 1150 °C 전기로에서 3시간 용융하여 폐촉매유리고화체를 제조하였다.

다. 침출시편제조

위에서 만든 폐촉매유리고화체를 두께 1 ~ 2 mm로 평판화한 후 diamond saw를 이용하여 시편을 절단, 가공, 연마하고 초음파세척기로 세척한 후 사용하였다. 이들의 표면적과 중량은 각각 5.02-7.96 cm², 1.0097- 2.0145 g 이었다.

2. 실험방법

가. TG/DTA 분석

Setaram사(TG/DTA-92) 열분석기를 이용하여 폐흡착재의 fly ash, SiO₂, Na₂CO₃, B₂O₃등을 표 2와 같은 조성으로 잘 혼합한 시료의 DTA와 TG실험을 수행하였다. 실험조건은 시료를 10 °C/min의 가열속도로 1150 °C에서 3시간 유지시켰으며 유량은 분당 20 cc가 되게 하였다.

나. 고화체의 Soxhlet 침출실험

침출실험용 시편을 48시간 동안 계속적으로 재증류된(re-distilled) 물에 노출시켰다. 침출액으로 100ml의 증류수를 사용하였다. 시료 분석은 Atomic Absorption Spectrometer 및 ICP-Emission Spectroscopy를 이용하여 침출액중의 Cs, Na, B, Si, Al 등의 농도를 분석하였고, 다음 식³⁾에 의해 침출분율을 계산하였다.

$$C_{Fi} = \frac{\sum A_i}{A_o}$$

where

C_{Fi} : the cumulative fraction of component i released

$\sum A_i$: the cumulative amount of component i that has been leached from the waste form

A_o : the initial amount of component i in the waste form

III. 결과 및 고찰

CsNO₃ 와 fly ash를 혼합하여 1200 °C에서 1시간 유지시켜 만든 반응생성물의 X선 회절분석결과 그림 1에서 보는 바와 같이 pollucite가 형성된 것을 확인할 수 있었다.

폐흡착재와 타성분들의 혼합물에 대한 열중량분석과 시차열분석 결과를 그림 2에 나타내었다. 이 그림에서 보는 바와 같이, 450 °C와 750 °C 사이에서 무게감량과 흡열피크가 보이는데, 이는 Na₂CO₃ 의 분해온도와 거의 일치하며⁴⁾ 무게감량은 약 12 %로 Na₂CO₃에서 Na₂O로의 무게감량(13.2%)과 거의 일치한다. 본 열

분석 실험에서는 미연탄소분을 연소시킨 석탄회를 사용하였기 때문에 미연탄소분에 의한 무게감량이나 DTA곡선 상 발열피크는 보이지 않는다. 750 °C부터 1100 °C까지는 무게변화가 거의 없고 1150 °C부터는 무게감량이 보이는데 이것은 base glass 고유성분의 휘발에 의한 것으로 생각된다.

폐흡착재의 함량이 서로 다른 붕규산유리고화체를 증류수중에 노출시켰을 경우 각 원소들의 침출분율은 6×10^{-6} - 4×10^{-4} gr/cm²/day의 값을 나타내었다.

IV. 결론

폐흡착재의 함량이 15 ~ 30 %인 붕규산유리고화체중 세슘의 침출율은 양호한 내침출성을 나타내었다.

V. 참고문헌

1. P. J. Hayward, et al., A Review and Discussion of Candidate ceramic for Immobilization of High- Level Fuel Processing Wastes, AECL-6815, 1982
2. L. A. Chick, et al., Effects of Composition on Properties in an 11-Component Nuclear Waste Glass System, PNL-3118, 1981
3. IAEA, Chemical Durability and Related Properties of Solidified High-level Waste Forms, IAEA-TR-257, 1985
4. MERCK Index, 1995

표 1. 폐흡착제의 조성

	Si	Al	Na	B	Cs
중량비	13.5%	2.1%	520ppm	39ppm	42%

표 2. 모의폐흡착제고화체 조성

세습함량(wt %)		0	6.3	8.4	10.5	12.6
fly ash		45	33.5	29.6	25.8	21.9
SiO ₂		20	18.7	18.3	17.9	17.5
Na ₂ O		20	18.7	18.3	17.9	17.5
B ₂ O ₃		15	14.1	13.7	13.4	13.1
waste	Cs ₂ O	0	6.3	8.4	10.5	12.6
	flyash	0	8.7	11.6	14.5	17.4

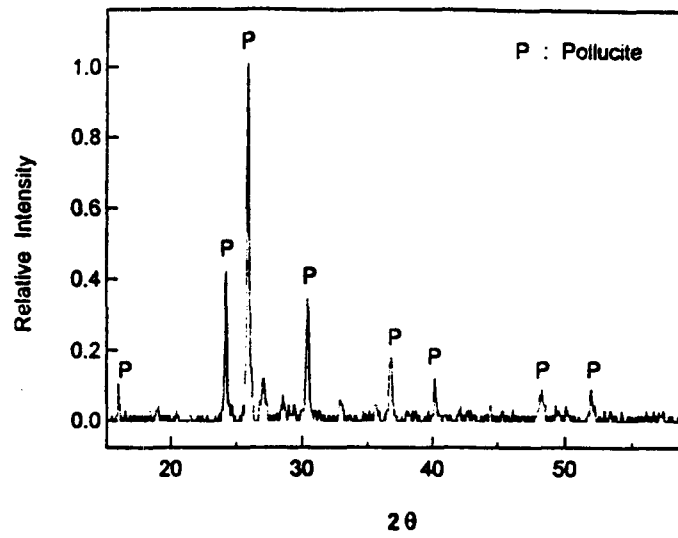


그림 1. 세슘과 fly ash의 포집반응생성물의 X-선 회절 분석 결과

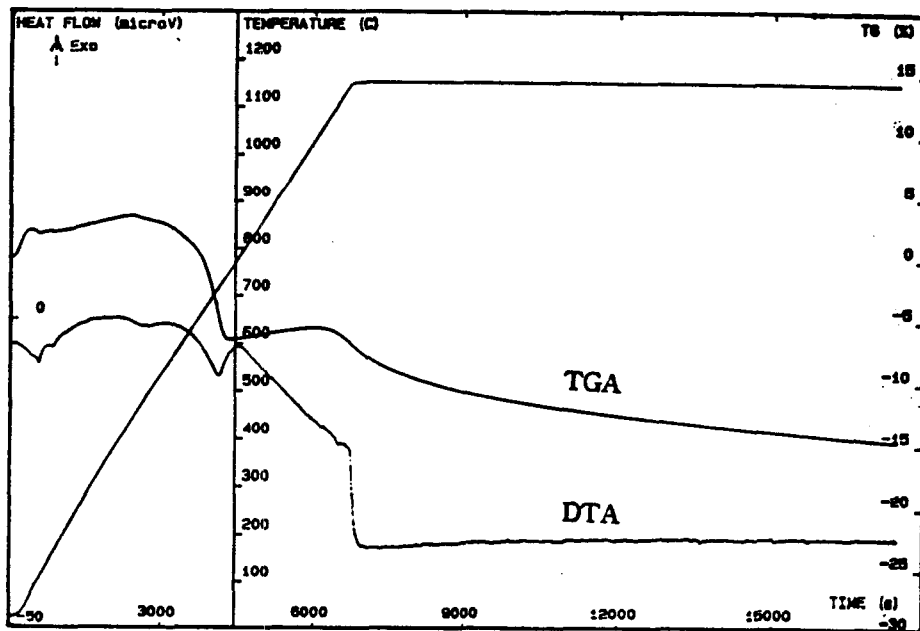


그림 2. 유리고화체의 TGA 와 DTA의 분석 곡선