

방사성폐기물 유리고화체의 화학적 특성

김지연, 김천우, 최종락, 문영표, 지평국, 박종길, 신상운

한국수력원자력(주) 원자력환경기술원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

유리화(vitrification)란 유해성물질들을 화학적으로 견고성이 뛰어난 유리구조안에 결합시키고 이 유해성물질들을 환경과 인간에게 영향이 없도록 영구적으로 가두는 환경친화적 처리기술이다. 방사성폐기물 유리화의 결과로 발생한 유리고화체는 처분환경에서 방사성물질을 환경에 누출시키지 않고 장기간 보존하는 화학적 견고성이 다른 재료들 보다 뛰어난 장점을 가진다. 때문에 유리는 현존하는 재료 중 방사성폐기물 처리 매질로 가장 각광을 받고 있다. 원자력환경기술원은 그동안 개발한 유리조성들을 국제적으로 인증된 침출시험법들을 이용하여 침출시험들을 수행하고 분석하여 유리고화체들의 화학적 안정성을 비교 평가하고자 하였다. 원전에서 연간 발생하는 저방사성폐수지, 무기이온교환체(zeolite), 가연성잡고체(DAW)를 단독 또는 혼합하여 유리화 하기위해 두 가지 후보유리를 개발하였다. AG8W1은 저방사성폐수지와 zeolite, DAW가 일정하게 혼합된 폐기물 처리용 유리이며 DG-2 유리는 원전 가연성잡고체 중 PVC 함유 재료를 제외한 나머지를 혼합하여 유리화하기 위해 개발한 유리이다. 두 후보유리에 대한 개략적인 특성들을 표 1에 요약하였다.

표 1. 후보유리의 조성 및 계산된 물성 († : 1,150℃에서의 값임)

	후보유리	
	DG-2	AG8W1
SiO ₂	41.25	43.14
알카리 금속	20.65	20.44
B ₂ O ₃	11.29	9.97
Al ₂ O ₃	7.07	12.3
알카리 토금속	14.4	6.94
전이금속	0.37	5.57
기타	4.97	1.64
밀도 (g/cm ³)	2.65	2.67
점도 (poise)†	10	67
전기 전도도 (S/cm)†	0.46	0.31
액상온도(℃)	745	758
미네랄 loading (wt%)	25	40
감용비	175	84

본 연구에서는 두 후보유리에 대한 화학적 견고성을 평가하기 위한 방법으로 두 가지 침출시험법을 사용하였다. 침출시험법은 크게 사용목적, 침출수 교체 등에 따라 분류할 수 있는데 그 중 첫 번째 침출시험법으로는 7일에서 120일 동안 두 후보 유리고화체의 주요 구성성분인 Na, B, Li, Si의 침출거동을 미국 고준위 유리화의 기준유리(SRL-EA)의 침출거동과 비교하기 위하여 US DOE PCT(Product Consistency Test)를 수행하였다. 100~200mesh(149~74μm) 크기의 유리시료 5g 정도를 취한 다음 용기(Stainless Steel Vessel 304L)에 넣고 유리의 표면적과 탈염수의 체적비(SA/V)가 2000m⁻¹ 이 되도록 하여 90℃ 온도에서 시험하였다. 침출시험법에서 후보 유리고화체로부터 침출된 원소들의 농도는 ICP-AES/MS를 사용하여 분석하였으며 침출액의 pH 거동 평가를 위하여 침출액은 실온까지 냉각 후 측정하였다. 유리고화체로부터 침출되어 나온 네 원소들의 농도를 분석하여 침출률을 평가한 결과 두 후보유리의 네가지 원소들에 대한 침출률은 기준유리 원소들의 침출률에 비해 낮음을 알 수 있었다. 대표적으로 7일 PCT 침출률에 대하여 두 후보유리와

기준유리의 결과를 그림 1에 나타내었다.

두 번째 침출시험법으로는 화학적 견고성을 위한 것으로 VHT(Vapor Hydration Test)을 수행하였다. 시편은 $10 \times 10 \times 1.5 \text{mm}^3$ 으로 모든 면을 600grit의 SiC paper로 연마하였다. 탈염수와 아세트산으로 충분히 세척한 후 Parr 22ml T304 stainless steel vessel에 시편을 탈염수 0.25ml와 함께 취한 다음 $200^\circ\text{C} \pm 2^\circ\text{C}$ 에서 7일 동안 시험하였다. 시험을 마친 시편은 각 부분의 면을 측정하여 부식률(corrosion rate)을 구하였다. 미국 Hanford 저방사성폐기물(Low Activity Waste) 유리화에 대한 DOE의 VHT의 기준은 $50 \text{g/m}^2/\text{day}$ 이하로 규정되어 있는데, 원자력환경기술원에서 개발한 AG8W1, DG-2 후보유리는 훨씬 밑도는 결과가 나왔다. 본 VHT 시험은 Univ. of Missouri-Rolla의 Graduate Center for Materials Research에서 수행하였다.

결론적으로 향후 올진 유리화 시설의 상용운전을 위해 개발한 후보유리들의 화학적 견고성은 국제적으로 규제하고 있는 기준치들 보다 훨씬 낮은 상태로 안정화 되어 있어서 화학적 견고성이 매우 우수함을 입증하였다.

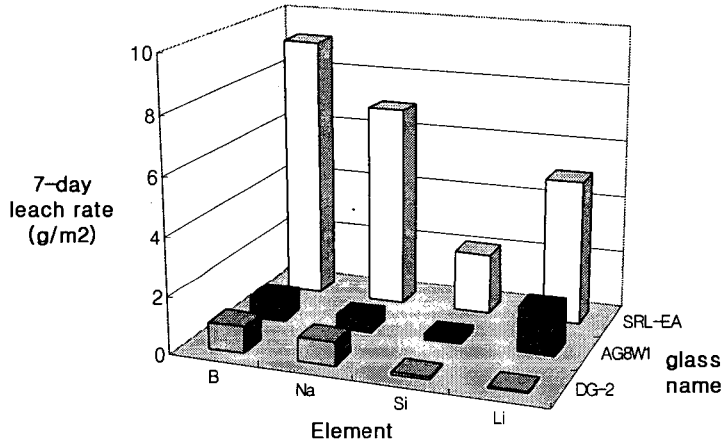


그림 1. 7-day leach rate of Candidate glasses and SRL-EA glass