

## SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>(SAP)을 이용한 폐용융염의 안정화/고형화

박환서, 김인태, 김환영, 안병길, 김준형

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150

[hspark72@kaeri.re.kr](mailto:hspark72@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

용후 핵연료내 우라늄 및 초우란 원소를 회수하는 pyroprocess공정에서 발생하는 폐용융염은 대부분이 금속염화물(LiCl 또는 LiCl-KCl)로 구성되어 있으며, 소량의 핵분열생성물이 염화물상태로 존재한다. 알칼리 금속염화물은 900℃이내에서 대부분이 휘발되며, 고화매질인 붕규산 유리매질과의 상용성(compatibility)이 낮아 고온공정에 직접적용하여 고화시키기 어려워 간접적인 화학적 경로를 이용하여 고화에 용이한 물질로 전환시키는 것이 바람직하다. 이러한 점에서, 미국의 ANL(Argonne National Laboratory)에서는 제올라이트를 이용하여 금속염화물을 sodalite(Na<sub>8</sub>Al<sub>6</sub>Si<sub>6</sub>O<sub>24</sub>Cl<sub>2</sub>)로 전환하는 방법을 제안하였다<sup>1</sup>. 수화학적 안정성이 우수한 반면에, 최종처분되어지는 부피가 10배이상 증가하는 단점을 가진다. 일본의 경우, 1000℃수준에서 붕산과 용융염을 고온반응시켜 붕산유리질로 변환시키는 방법을 고려하였다. 붕산을 이용한 방법도 전체적으로 유리질을 형성하는 장점을 가지나 Cs의 전환이 완전하지 않으며 Cs의 휘발에 대한 2차폐기물의 처리에 대한 고화법을 필요로 한다. 본 연구에서는 제올라이트를 대체할 수 있는 새로운 물질인 SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>(SAP)을 이용하여 금속염화물을 열적으로 안정한 화합물로 전환함으로써, 고온고화공정에 적용할 수 있도록 하여 고화시키는 방법을 제안하고자 하였다.

### 2. 실험 및 결과

SAP으로 명명되는 물질은 TEOS(tetraethyl orthosilicate, Aldrich, Germany), AlCl<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O 및 H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>를 원료로 하여, Ethanol 및 H<sub>2</sub>O에 상기의 원료를 Si/Al/P의 몰비를 변화시켜 sol-gel법을 이용하여 합성하였다. 용융염의 모의 폐기물은 LiCl, CsCl 및 SrCl<sub>2</sub> 시약을 각각 90wt%, 6.8wt%, 3.2wt%로 혼합하여 제조하였다. 제조된 SAP을 150μm이하로 분쇄하여 모의폐기물과 상온에서 혼합한 후, 650℃에서 16시간동안 반응시켜 XRD, TG/DTA 및 PCT 침출시험법(ASTM Standard C 1208-02)을 이용하여 반응특성, 열적, 수화학적 안정성을 조사하였다. 이때, SAP/salt의 비를 1~4로 변화시켜 적정반응비를 확인하고자 하였다.

기초실험을 통하여 LiCl, CsCl, SrCl<sub>2</sub> 및 CeCl<sub>3</sub>의 반응특성을 조사하였다. 알칼리 원소의 경우, metal-aluminosilicate나 metal-phosphate로 얻어진 반면에, Sr 및 Ce는 phosphate화합물로 전환되는 것을 확인하였다. Fig 1은 SAP의 조성과 반응비에 따른 생성물의 XRD pattern을 나타낸 것으로 주 생성물은 Li-aluminosilicate와 Li<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>였으며, 반응비가 커질수록 AlPO<sub>4</sub>의 특성피크가 증가하는 것을 확인할 수 있었다. AlPO<sub>4</sub>의 존재는 반응비의 적정성을 가늠할 수 있는 중요한 생성물이다. SAP은 용융염과 반응할 경우, 세개의 반응 active site(Si-O-Al 또는 P-O-Al 또는 P-O-P)가 형성되는데, 금속염화물이 과잉으로 존재할 경우, AlPO<sub>4</sub>의 특성피크가 없는 반면에, SAP이 과잉으로 존재할 경우에는 AlPO<sub>4</sub>가 존재하는 것으로부터, 반응비의 적정성 여부를 판단할 수 있다. Fig 1에서 보는 것처럼, SAP/salt의 비가 2이상인 경우는 salt를 처리할 수 있는 반응site가 존재하고 있음으로 말해준다. 상기의 결과로부터, 최대 반응비는 1과 2사이일 것으로 판단된다. 방사성 폐기물의 안정적 처리관점에서는 AlPO<sub>4</sub>가 일정부분 존재하고 있는 2가 최적 반응비가 될 수 있을 것이다.

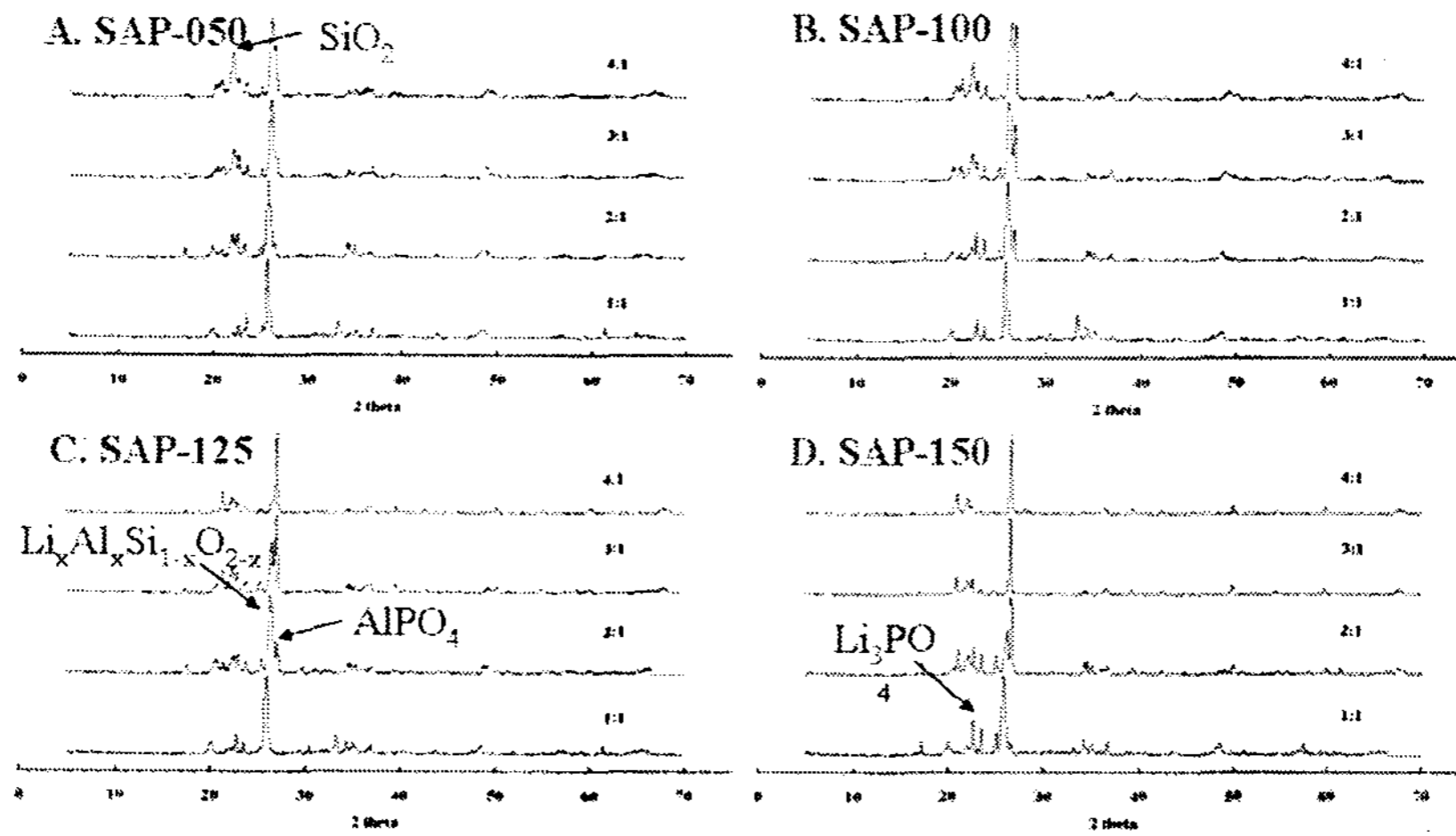


Fig 1. XRD patterns of reaction products with different reaction ratio and SAPs

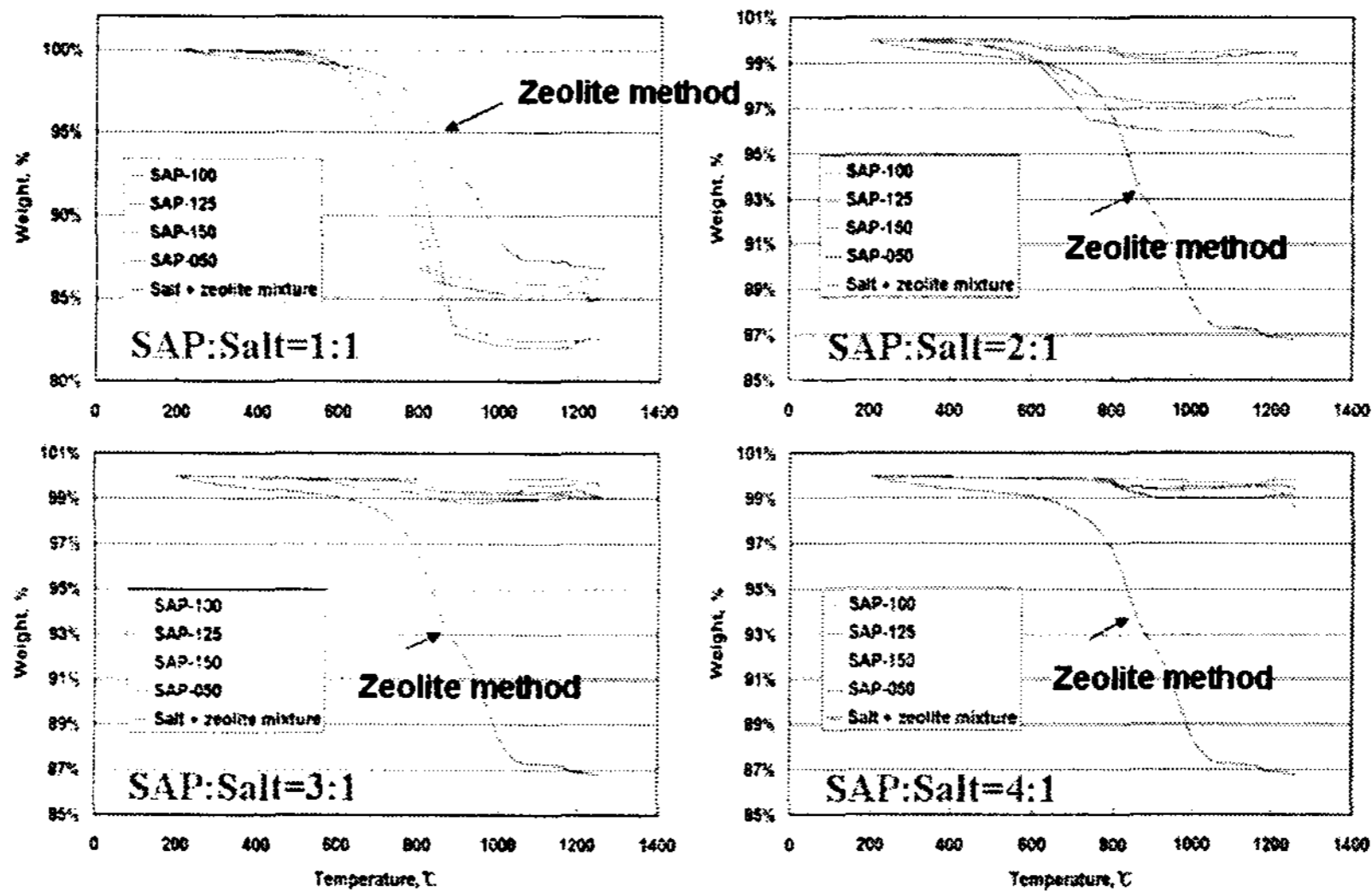


Fig 2. TGA result of reaction products with different reaction ratio and SAPs

이러한 적정반응비는 Fig 2에 나타난 것처럼, TGA의 결과에서도 확인할 수 있다. SAP 125 및 SAP150의 경우, 반응비가 2이상인 경우에는 1200°C까지 휘발감량은 1wt%이하로 나타났다, 이는 금속염화물의 전환율이 99%수준임을 말해주는 하나의 근거가 된다. CI의 잔존율을 확인한 결과 반응비가 2인 경우, 약 98~99%의 전환율을 보였다.

### 3. 결론

본 연구에서 제안된 SAP을 이용한 염화물계 폐용융염을 안정화 및 고형화시키는 방법은 기존의 방법에 비해 높은 처리효율을 나타내며, 열적으로 안정한 생성물을 얻을 수 있는 효과적인 고화방법으로서 현재 수화학적 안정성 평가가 진행중에 있다.

사 사

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.