

방사성폐기물 처리용 모의 유리의 침출 경계면 변화 분석

김천우, 박종길, 최영부

한국수력원자력(주) 원자력발전기술원, 대전광역시 유성구 장동 25-1

cheonkim@khnp.co.kr

1. 서론

유리화 공정 중 발생한 유리는 중간저장 및 최종처분 환경에서 화학적으로 안정해야 한다. 많은 재료 가운데서도 유리가 방사성폐기물의 처리 매질로 선정된 가장 큰 이유는 방사성물질을 환경에 쉽게 누출시키지 않고 유리구조안에 장기간 보존하는 우수한 화학적 내구성 때문이다. 원자력발전소에서 발생되는 W1 폐기물(저방사성폐수지, 제올라이트, 가연성잡고체)을 유리화하는데 사용되는 AG8W1 유리와 W1 폐기물에 고방사성폐수지를 추가한 W2 폐기물을 유리화하는데 사용되는 AG8W2 유리를 개발하였다. 개발한 두 유리 표면과 물이 만나는 경계면 변화 분석을 위하여 ISO(International Standardization Organization) 침출시험법을 적용하였고, 주사전자현미경(SEM)과 에너지분산형분광기(EDS)를 이용하여 침출 경계면을 분석하였다.

2. 본론

가. 침출시험 및 경계면 분석

침출시험에 사용한 두 종류의 유리는 ISO법에서 요구하는 봉 모양(지름 약 1.25cm, 높이 약 3cm)으로 제작되었고 탈이온수가 채워진 특수 플라스틱 용기에 넣어졌다. 침출 환경을 다소 극한상황으로 모사하기 위하여 ISO법에서 가장 높은 90°C를 선정하여 침출시험을 수행하였다. 침출수는 시험법에서 요구하는대로 4주마다 정기적으로 교환되었으며, 총 1,386일간 침출시험을 수행하였다. 침출시험에 종료된 후 두 유리시료의 침출경계면 보존을 위하여 에폭시 화합물을 이용하여 유리시료를 고정 하였으며, 경계면을 다이아몬드 절단기로 잘라 SEM/EDS를 이용하여 침출경계면을 분석하였다. SEM으로는 침출 경계면의 모양을 관찰하였으며, EDS로는 침출 경계면의 성분변화를 분석하였다.

나. 분석결과

그림 1에서 두 유리의 침출 경계면 SEM 이미지를 보여 주고 있다. 각 유리에 대한 SEM 이미지 좌편의 가장 밝은 부분은 침출현상이 없는 유리의 모체를 나타내고 있고, 중간 밝기인 가운데 부분이 물과 접촉하여 변형이 일어난 층(altered layer) 이미지를 보여주고 있다. SEM 이미지 분석결과 AG8W1 유리의 변형층은 AG8W2 유리 변형층 보다 비교적 일정한 모양을 유지하고 있음을 알 수 있었다. AG8W1 유리와 같이 변형층이 잘 보존될 경우 유리의 모체로부터 지속적인 침출을 막아주는 역할을 할 것으로 판단되는데 이는 실제적인 두 유리의 침출률 결과를 비교할 때 일치 하는 것으로 나타났다[1].

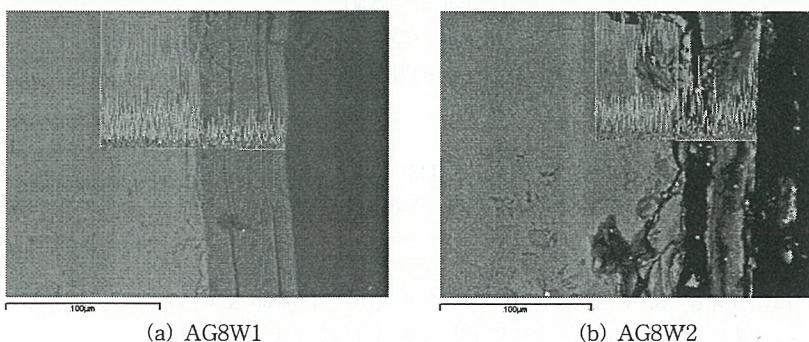


그림 1. 두 유리시료(AG8W1 & AG8W2) 침출 경계면 이미지 및 x-ray mapping 결과

EDS로 분석한 두 유리의 침출 경계면에서 모체와 변형층간 몇 가지 성분들의 상대적 조성변화를 그림 2에 나타내었다. 유리 AG8W1과 AG8W2 침출 경계의 변형층에서 Si는 절반정도 감소하였고, K와 Na는 변형층내에 없거나 미량 존재 하는 것으로 분석되었다. Si 농도는 가교를 이루었던 산소와 동반 침출로

인해 감소하였고, +1가인 K, Na의 경우 이온결합으로 인해 다른 원소 보다 상대적 결합에너지가 낮아 유리 구조내에서 오래 버티지 못한 결과로 볼 수 있다. 변형층에서 상대적 농도가 유사하거나 증가한 Al, Fe, Ti, Zr의 경우 이를 원소들로 인한 새로운 물질의 생성 즉, 결정화가 주된 원인으로 추정된다.

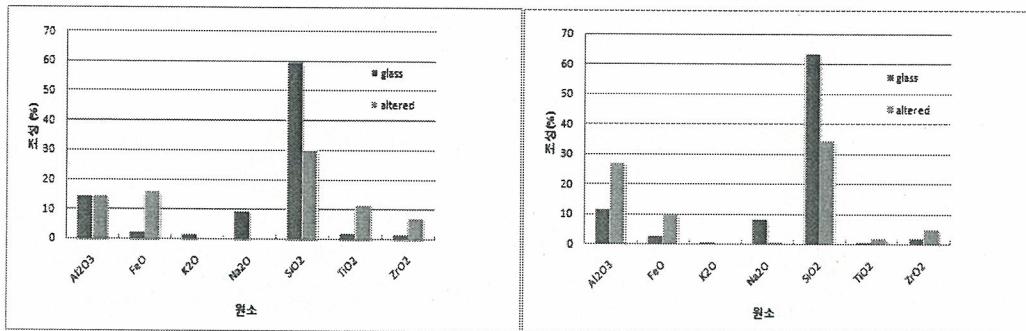


그림 2. 두 유리 경계면에서의 모체(glass)와 변형층(altered)간 주요성분 상대적 변화 그래프

EDS의 x-ray mapping 기능을 이용하여 AG8W2 유리의 모체(0~55μm)와 변형층(55~110μm) 사이 Si(실리콘)의 농도변화를 그림 3에서 볼 수 있다. 그림에서 x 축은 유리 모체로부터 변형층의 거리(μm)를 y 축은 농도를 나타내는 임의의 수를 나타내고 있다. AG8W2 변형층내에서 Si의 농도는 급격히 감소하였으며 유리 모체와는 달리 상대적으로 비균질하게 분포하고 있음을 알 수 있었다. 이는 물이 접촉한 변형층내 Si 일부분이 물로 빠져 나온 후 Si 콜격이 양성해졌기 때문이다.

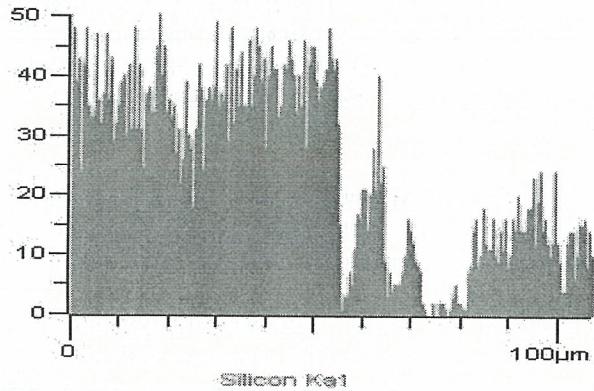


그림 3. 두 유리 침출 경계면 실리콘(Si)의 x-ray mapping 결과
(x 축 : 유리 모체(0~55μm)로부터 변형층(55~110μm)의 거리, y 축 : Si 농도에 대한 임의의 수)

3. 결론

중·저준위 방사성폐기물 유리화용 두 모의 유리에 대한 침출 경계면의 이미지 분석과 유리 변형층에 대한 성분분석을 수행하였다. 두 모의 유리 침출 경계면에 대해 SEM 이미지 분석결과 AG8W1 유리 침출 경계면의 변형층이 AG8W2 변형층 보다 다소 안정된 모양을 유지하고 있었다. AG8W1 유리의 침출률이 AG8W2 보다 낮은 것과 연계해 볼 때 침출영역의 변형층 형태는 유리의 화학적 내구성과 밀접한 연관성을 가지고 있음을 알 수 있었다. 유리가 물에 접촉 시 유리 모체의 추가적 침출을 지연시키거나 방지하는 변형층 형성 연구 등에 본 연구결과가 유용하게 이용될 예정이다.

참고문헌

- [1] 중·저준위 방사성폐기물 유리화 원형플랜트 개발(II), 지식경제부, R-2002-A-214, pp.301-303, (2008)