

## 무기매질(SAP 1071)을 이용한 LiCl-KCl 염폐기물 탈염화 및 고화

여선옥, 박환서, 박현혜, 조인학\*, 김인태, 안병길, 조용준

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

\*충남대학교, 대전광역시 유성구 대학로 79

sunokv@kaeri.re.kr

## 1. 서론

고온의 용융염내에서 전기화학적 방법을 이용하여 사용후핵연료에서 U과 TRU 금속을 회수하는 사용후핵연료 건식처리공정(pyrochemical process)에서는 핵분열생성물을 함유한 방사성 염폐기물이 발생된다. 이 염폐기물내에 함유되어 있는 핵분열생성물들은 대부분 염화물 형태로 존재하며, 높은 휘발성과 유리매질과의 낮은 적합성 등과 같은 물리화학적 특성 때문에 기존의 고화방식을 적용하는데 어려움이 있다[1]. 본 연구에서는, 무기매질(SAP 1071)을 이용한 LiCl-KCl 염폐기물의 탈염화 및 고화특성을 살펴보았다.

## 2. 실험 및 결과

무기매질 ( $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$ , SAP)은 졸겔공정(sol-gel process)을 이용하여 제조되었다. Si, Al, P의 전구물질로서 tetraethyl orthosilicate (TEOS, Aldrich, 98%), aluminum chloride ( $\text{AlCl}_3\cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , Junsei, 98%) 그리고 phosphoric acid( $\text{H}_3\text{PO}_4$ , Junsei, 85%)가 사용되었다. Si/Al/P의 몰비는 1/0.75/1로 조절되었다. SAP은 90 wt%의 LiCl-KCl, 5 wt%의 CsCl 그리고 5 wt%  $\text{SrCl}_2$ 로 구성된 모의염과 혼합시켰고, 혼합비율은 SAP/모의염이 3이 되도록 하였으며 350 °C~650 °C의 온도에서 10~24시간동안 반응시켰다. 탈염화반응 후 생성물의 고화체 제조를 위한 chemical binder로서 다른 조성을 가지는 유리를 사용하였으며, 그 조성은 Table 1과 같다.

LiCl-KCl 염폐기물과 SAP 1071의 탈염화반응 후 잔류하는 생성물의 이론적 무게는 약 88.3 wt%이며, 실제 실험에서 잔류물의 무게는 약 88.8 wt%였다. 탈염화반응온도가 350 °C에서 650 °C까지 증가할 때 탈염화 반응율은 약 7%에서 100%까지 증가하였다. 반응시간을 10시간으로 고정하면서 반응온도를 단계별로 연속적으로 증가

시키면서 탈염화반응성을 살펴보았다. 550 °C까지 온도를 증가시켰을 때 최대 반응율은 약 65%였고 650 °C에서 반응이 종료되었다. 낮은 온도에서는 LiCl-KCl내 LiCl의 반응이 우선적으로 진행될 것으로 판단되며 이는 미반응 잔류염의 용융점을 증가시킬 것으로 사료된다. 이러한 이유에서 원래 LiCl-KCl 공융염의 공융점(360 °C)보다 높은 온도에서도 65%의 탈염화 반응율을 보이고 650 °C에서 그 반응이 종료되는 것으로 판단된다. 이러한 경향은 TGA 분석결과에서 확인할 수 있었다.

탈염화반응 생성물의 고화체 제조는 혼합비율(25~40wt%)과 반응온도(950~1150 °C)를 변화시키면서 수행하였다. 제조된 고화체는 대부분 bulk phase separation을 보이지 않고 매우 규질한 형태를 보였다. 그러나 고화체의 밀도와 경도를 낮추는 약간의 내부 기공이 존재하였다. 실험조건에서  $\text{AlFe}_3$ 의 경우가 상대적으로 가장 높은 밀도를 보였다. 1050 °C보다 고화온도를 증가시키에 따른 고화체 phase의 변화는 크지 않을 것으로 판단되었다.

고화체 제조과정에서의 휘발성 물질의 휘발정도를 살펴보기 위해 고화체 제조 전후의 무게변화를 측정하였다. 그 결과 무게변화는 온도, 유리함량 그리고 유리조성에 영향을 받지 않는 것으로 확인되었으며, 무게 변화는 error range로서 무시가 가능할만큼 크지 않아 고화체 제조과정에서 휘발성물질이 거의 휘발되지 않는 것으로 판단된다.

1050 °C에서 제조된 고화체를 이용하여 PCT-A 방법에 따른 침출시험을 실시하였다. 그 결과, 일반적인 무게 손실은 알칼리 금속에 대해서는 약  $10^{-1}\sim 10^{-2}$  g/m<sup>2</sup>, 알칼리토 금속에 대해서는  $10^{-1}\sim 10^{-3}$  g/m<sup>2</sup> 그리고 고화체의 주요 원소에 대해서는  $10^{-1}\sim 10^{-3}$  g/m<sup>2</sup>였다. 주요 방사성핵종(Cs, Sr)에 대한 침출 저항성은 다른 방사성폐기물 고화체에 비해 매우 우수한 것으로 확인되었다.

Table 1. Glass composition used for consolidation of reaction products after a dechlorination test

	Al-Fe	Al-Fe1	Al-Fe2	Al-Fe3	Al-Fe4
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	11.54	9.95	10.36	10.77	9.03
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5.77	6.47	6.73	7.00	11.74
CaO	15.38	10.95	9.32	7.53	2.71
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	11.54	9.95	8.33	6.82	9.03
Li <sub>2</sub> O		2.99	3.11	3.23	2.71
Na <sub>2</sub> O	5.77	5.97	6.22	6.46	6.05
SiO <sub>2</sub>	50.00	53.73	55.94	58.18	58.72

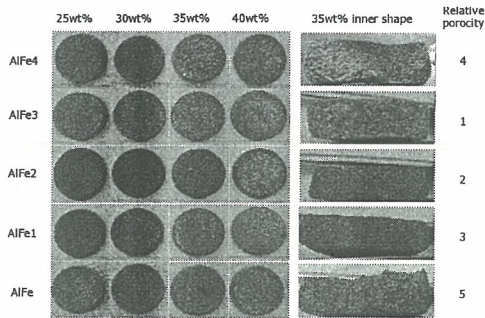


Fig. 1. Photos of consolidated products with different glasses at 950 °C.

### 3. 결론

본 연구에서는 무기합성매질을 이용한 LiCl-KCl 염폐기물의 안정화 및 고화에 대한 특성이 조사되었다. 탈염화 방법은 고화체 제조과정에서 휘발성 방사성핵종 또는 화합물을 안정적으로 제어할 수 있는 좋은 방법임을 확인할 수 있었다. 기공이 없이 높은 균질성 및 밀도와 강도를 가지는 고화체를 제조하기 위해 일정 고화온도에서 유리조성과 탈염화반응 생성물 사이의 적합성에 대한 연구가 추가되어야 할 것으로 사료된다.

### 4. 참고문헌

- [1] B.L. Metcalfe, I.W. Donald, Candidate Wasteform for the Immobilization of chloride-Containing Radioactive Waste, Journal of Non-Crystalline Solids, Vol. 348, pp. 225, 2004.