

Ln 산화물 세라믹 고화체 특성

안병길, 전성훈, 박환서, 김환영, 조용준
 한국원자력연구원, 대전시 유성구덕진동 150번지
 bgan@kaeri.re.kr

1. 서론

사용 후 핵연료의 재활용 및 처분 부피 절감을 위해서 용융염을 사용하는 건식공정(pyrochemical process 혹은 pyroprocessing)은 2차 방사성폐기물의 발생량이 적고 공정이 간단할 뿐만 아니라, 핵 확산에 대한 저항성이 매우 크다는 장점이 있기 때문에 미래의 핵주기 기술로서 주목받고 있다. 건식 공정 중 전해 정련 공정에서 발생하는 폐 용융염 내에는 방사성 란타나이트(Ln) 염화물이 존재하며, 이를 제거함으로써 재사용이 가능하다. 재생 공정에 적용되는 방법으로 산소 분산방법에 의해 Ln 염화물을 산화물을 침전 분리한 후 잔류물을 감압 증류하여 공융염을 회수한다. 최종적으로 분말상의 Ln 산화물 형태의 폐기물이 발생되며, 이들 분말상의 희토류 폐기물은 처분 환경에서 장기간 건전성을 유지할 수 있는 안정한 고화체로 제조 되어야 한다. 본 연구에서는 제조 공정이 단순한 분말 소결 공정에 의해 장기간 건전성을 유지할 수 있는 안정한 고화체를 제조하기 위한 고화매질 연구로부터 Zn_2TiO_4 가 주 성분이며 그 외 $CaHPO_4$, SiO_2 , B_2O_3 로 구성된 ZIT(Zinc Titanate) 세라믹 고화매질을 개발하였다. 구성 성분 중 $CaHPO_4$ 는 Ln 산화물을 보다 더 안정한 물질인 Ln 모나자이트($Ln-PO_4$)로 치환시키기 위한 반응물로 첨가하였다. 실험에 사용된 Ln 폐기물은 Mark-IV 폐기물을 모사하여 사용하였다. 이러한 ZIT 세라믹 고화매질을 이용한 Ln 산화물 고화체를 제조하여 침출 특성, 물리적 특성(밀도, 열전도도, 비열, 경도), XRD 및 SEM-EDS에 의한 고화체 특성을 고찰하였다.

2. 본론

2.1 실험 방법

monazite계 세라믹 고화체 제조를 위해서 phosphate 화합물 원료는 $CaHPO_4$ (CHP)를 합성하여 사용하였다. Binding matrix의 제조는 ZnO와 TiO_2 를 기본물질로 하여 내구성이 우수한 zinc

titanite(ZNT) 세라믹을 제조하였으며 XRD 분석으로 확인 하였다. 부가적 binding matrix로는 SiO_2 및 B_2O_3 를 사용하였다.

실험에 사용된 Ln 산화물 폐기물은 표 1과 같이 Nd, Ce, La 및 Y 산화물로 구성된다. 실험 조건은 ZIT 고화매질을 이용하여 Ln 산화물이 30wt% 포함된 고화체를 제조하였으며, 제조 방법은 ZIT 매질/ Ln 산화물로 구성된 혼합물을 혼합 후 graphite 도가니에 넣은 후 질소 분위기에서 $10^\circ C/min$ 의 승온 속도로 $1100^\circ C$ 에서 4시간 동안 고상 소결하였다.

ZIT 매질 조성 ; ZNT/ CHP/ SiO_2 / B_2O_3 =59/ 18/ 10/ 13

Table 1. Composition of Ln waste.

Components	Mark-IV	Simulated waste
YCl_3	3.51E-3	7.7
$LaCl_3$	4.49E-3	10.0
$CeCl_3$	1.03E-2	34.0
$PrCl_3$	5.15e-3	48.3
$NdCl_3$	1.73e-2	
$PmCl_3$	6.33e-4	100.0
$SmCl_3$	3.79e-3	
$EuCl_3$	1.41e-4	100.0
$GdCl_3$	7.92e-5	
$TbCl_3$	3.51e-6	100.0
$DyCl_3$	6.60e-7	
SUM	4.54e-2	100.0

2.2 실험 결과

실험결과 얻어진 고화체 사진(그림 1)을 보면 monolithic한 고 밀도(약 $4.2 g/cm^3$)의 고화체를 얻을 수 있었다. 제조된 고화 시편에 대한 XRD

분석결과를 그림 2에 나타내었으며, Ln-모나자이트와 산화물로 구성되어 있음을 알 수 있다. SEM 분석 결과(그림 3)를 보면 치밀한 구조로 구성되어 있음을 알 수 있다.

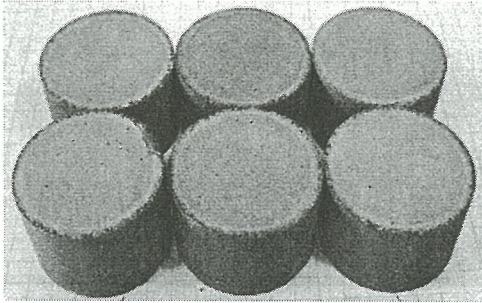


Fig. 1. Photographs of ZIT ceramic wasteforms.

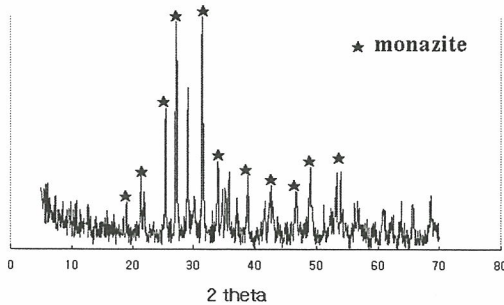


Fig. 2. XRD patterns of ZIT ceramic wasteform.

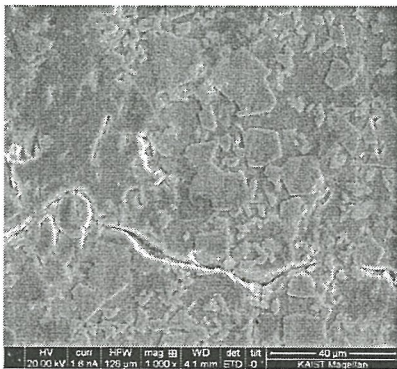


Fig. 3. SEM analysis of ZIT ceramic wasteform.

고화체에 대한 물리적 특성값을 표 2에 나타내었다. 이표를 보면 밀도가 약 4.2 g/cm³으로 유리 고화체(약 2.3g/cm³)에 비해 약 1.8배 크며, 열전

도 및 미세 경도가 우수함을 알 수 있다.

Table 2. Physical properties of ZIT ceramic wasteform.

Property	ZIT
Density (ρ), g/cm ³	~4.2
Thermal Conductivity (k), W/mK	1.7
Thermal Capacity (Cp), J/gK	0.65
Micro-hardness, Hv (GPa)	561(5.5)

3. 결론

전해정련 공정에서 발생하는 폐 용융염의 재활용을 위해 미 분말상의 Ln 산화물을 처분 환경에 적합한 고화체로 제조하기 위한 연구를 수행하였다. 그 결과 산화물 구성물이 모나자이트로 치환된 내 침출성이 우수한 고화체를 형성하였으며, 우수한 열전도도 특성으로 인해 고화체에 발열성 핵종의 농도를 높일 수 있는 특성이 있다. 또한 밀도가 유리고화체에 비교하여 약 1.8배 크므로 처분장 활용 면에서 유리한 특성이 있음을 알 수 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.