

방사성 폐기물 안정화 및 고형화를 위한 Iron-Phosphate Ceramic 고화 담체 개발

최종권*, 엄우용**

*포항공과대학교, 경상북도 포항시 남구 청암로 77

** Pacific Northwest National Laboratory, Washington, USA

jjangcjk@postech.ac.kr

1. 서론

Chemically Bonded Phosphate Ceramics (CBPCs) 방법을 이용하여 화학적 내구성이 뛰어난 천연 인산 염 광물과 성질이 유사한 다양한 세라믹 waste form이 개발 중에 있다. CBPCs 방법은 상온에서 금속 양이온과 인산 염 음이온의 화학반응을 통해 인산염 세라믹을 만들 수 있다 [1]. 현재 MgO 와 KH₂PO₄ 를 이용한 방법이 대표적인 인산염 세라믹 담체로서 연구되고 있으나, 이 담체에 사용되는 magnesium oxide의 높은 반응성 때문에, 화학반응을 지연시키기 위한 calcination 처리가 필수적이므로 전처리 비용이 든다[2]. 그에 반해 Iron oxide는 천연광물과 철강 산업의 폐기물로서 많은 양이 존재하여 쉽게 얻을 수 있으며, 반응성 또한 FeO, F₂O₃, Fe₃O₄에 따라 다르므로 적절한 비율에 따라 반응시간의 조절이 가능하다[2]. 이 연구에서는 포스코에서 산업폐기물로 생성되는 전로 슬래그를 사용한 Iron Phosphate Ceramics 의 제작 및 방사성폐기물 고형화에 관한 연구를 하고자 한다.

2. 본론

2.1 실험방법

2.1.1 사용되는 waste stream 의 종류

첫 번째 waste stream은 Tc-99을 포함하는 secondary waste인 off-gas scrubber solution 이 사용되었다. 또한 고온전해분리 공정에서 발생하는 LiCl-KCl 공융염 폐기물이 두 번째 waste stream으로 사용되었다. 첨가된 조성은 아래와 같다.

Table 1. Composition of LiCl-KCl salt.

Number	KCl(M)	LiCl(M)
(a)	1	1.45
(b)	2	2.9

2.1.2 Iron Phosphate Ceramics의 조성

전로 슬래그를 이용한 waste form은 다량의 Ca 및 기타 다른 원소 등 기존에 Iron Phosphate Ceramics에 존재하지 않는 원소의 존재로 인하여 기존의 조성으로 waste form을 형성하는 것이 어렵다. 이로 인해 전로 슬래그를 이용한 waste form의 제작은 기존 조성이 아닌 새로운 조성을 필요로 한다. 각각의 Waste stream에 대하여 다양한 조성으로 제작이 수행되었으며, 제작 가능한 IPCs 조성 및 초기 제작 slurry 사진은 Table 2 와 Fig. 1에서 각각 보여준다.

Table 2. Composition of IPCs without waste stream.

Number	Slag(g)	H ₃ PO ₄ (ml)	H ₃ PO ₄ (g)
(a)	1	1.5	2.5275
(b)	1	2	3.3700

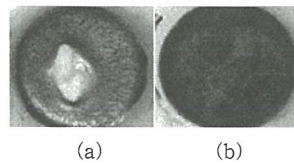


Fig. 1. IPCs prepared with different compositions.

2.1.3 IPCs의 물리화학적 특성 분석

Waste form에 대한 안정성 기준은 최소 압축 강도가 3.45MPa (or 500psi) 이상이어야 한다. 각각의 시편은 ASTM C-39 method를 따라 압축 시험이 진행되었다.

Waste stream에 따른 결정상의 변화와 결정 형태 등을 확인하기 위해 XRD분석을 실시하였으며, waste stream 및 waste form 구성성분에 대한 화학적 특성 분석을 위해 Scanning Electron Microscopy - Energy Dispersive Spectroscopy (SEM-EDS) 분석을 실시하였다.

2.1.4 Diffusivity Leach Test

ASTM C 2385 method A(PCT-A)를 통해

waste form의 Chemical durability를 평가하고, 또한 EPA 1315 Method를 통하여 IPCs의 Tc-99를 포함한 원소들의 Leachability Index(LI)를 평가하였다. Toxicity Characteristic Leach Procedure(TCLP)의 방법으로 사용되는 EPA 1311 method는 Resource Conservation and Recovery Act (RCRA)에서 규정된 금속 원소들의 침출 정도를 알아보기 위해 실시하였다.

2.1.5 Reductive Capacity Measurement

이 연구에서는 전로 슬래그의 자체 환원 용량을 측정하기 위해, Ce(IV) 과 Cr(IV) titration 방법을 사용하였으며, 두 가지 방법에 의한 결과를 비교 분석하였다.

2.2 결과 및 토의

KCl-LiCl 공용염 폐기물은 약 1 : 1.4 mole의 비율로 용액 형태로 처리되었으며, Table 2의 (a) 조성을 이용하여 IPCs를 제작하였다. Tc-99를 함유한 off-gas scrubber solution을 처리하기 위한 IPCs의 기본 조성은 Table 2의 (a)가 이용되었다. 물리적 강도를 증가시키기 위해 Fly ash Class F의 양을 변화시켜주면서 제작한 결과, 전로슬래그의 1/5 정도 양을 첨가하였을 때가 가장 좋은 결과를 보여주었다.

Table 3. Iron Phosphate Ceramics with KCl-LiCl eutectic salt solution.

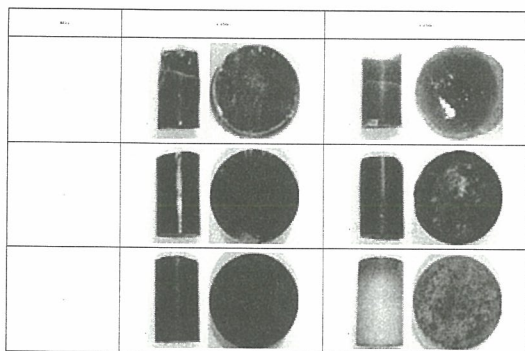


Table 3는 다양한 조성에 따른 제작된 IPCs의 사진이 첨부되었다. 그림에서 알 수 있듯이 Boric acid의 양이 증가할수록 균열의 발생이 적어지며, 첨가된 LiCl-KCl 공용염의 양이 적을수록 편석이 적게 생성되는 것을 알 수 있다. Boron의 첨가하였을 때, Fe 과 인산염의 반응을 어느 정도 늦출 수가 있었으나, Boron은 물에 침출될 가능성이

높아 화학적 내구성을 감소시키기 때문에 0.2 gram 이상의 H₃BO₃이 첨가되지는 않았다. LiCl-KCl 공용염을 waste stream으로 사용하여 최종적으로 안전하게 제작된 Iron Phosphate Ceramics의 조성은 Table 3의 (e) 로 결정되었다.

전로슬래그를 이용하여 제작된 IPCs의 압축강도는 약 16 MPa로 기준치인 3.45 MPa를 충족시켰다. EPA 1315 Method로부터 직접 유도되는 변수인 침출계수 (LI)는 시간에 관한 확산-조절 오염물질 방출을 평가한다. LI는 고화되고 안정화된 폐기물이 지표 밑에 있는 폐기물 저장 시설에서 처리되는 것을 평가하는 기준으로 사용되고 있으며, 대부분의 경우 고화된 폐기물의 LI 값이 7보다 크거나 동일할 때 효율적으로 처리된 것으로 본다. 본 실험에서 측정된 Tc-99의 침출계수도 일반적인 안전기준인 7.0 값보다 큰 값을 보여주었다.

3. 결론

산업폐기물의 하나인 포스코 전로슬래그를 사용한 Iron Phosphate Ceramics 제작 및 물리화학적 특성 평가를 통하여, 고온전해 분리 시 발생하는 waste stream에 따른 방사성폐기물 고정화 담체 제작이 가능하였다.

4. 감사의 글

This work was supported by World Class University (WCU) (R31-30005) Program through the National Research Foundation of Korea (NRF) funded by the Ministry of Education, Science and Technology.

5. 참고문헌

- [1] Arun S. Wagh and Seung Y. Jeong, J. Am. Ceram. Soc., 86 [11] 1838 - 44 (2003).
- [2] W.A. Ibrahim, H. A. Sibak and M. F. Abadir, Journal of American Science 2011 7 (9) 543-548.