

K-SAP을 이용한 방사성 핵종을 함유 LiCl 염폐기물의 고화특성 평가

한아름*, 이기락, 박환서

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*har0724@kaeri.re.kr

1. 서론

pyroprocessing 공정은 사용 후 핵연료 내에 포함되어 있는 U 및 TRU 핵종을 회수하기 위한 기술로 높은 핵비확산성으로 주목받고 있다. Pyroprocessing에는 연속된 전기화학 공정이 포함되며, 전기화학공정을 수행하기 위한 전해질로 다양한 종류의 알칼리 메탈 염화물이 사용되고 있다. 전해질로 사용된 알칼리메탈 염화물들은 공정이 진행된 후에는 방사성을 핵종을 함유하게 되어 방사성 폐기물로 처리하여야 하는데, 높은 반응성 때문에 처리하기 힘든 폐기물로 고려된다. 이러한 문제를 해결하기 위하여 본 연구팀에서는 무기합성 복합체(SAP: $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$)를 개발하였으며, 안정한 고화체를 제조하는데 성공하였다. 하지만 기존의 SAP 제조 법 및 고화체 제조 공정의 경우 상용으로 적용하기에 몇 가지 문제점을 가지고 있다. 기존의 SAP은 Sol-gel을 사용하여 대량 생산에 적합하지 않으며, 사용도는 전구체의 가격적인 부담을 가지고 있다. 뿐만 아니라 조성의 변화에 있어 너무 민감한 반응을 일으켜 폐기물 처리를 위한 고화체의 특성으로는 부적합한 면이 있다.

이와 같은 문제점을 해결하기 위해 본 연구에서는 K-SAP을 개발하여 기존 SAP의 염폐기물 고화 공정을 단순화하며 경제적인 고화체 제작법을 제안하였다. LiCl 염폐기물을 사용하여 균질한 고화체를 제작하였으며, 제작된 고화체의 물질특성을 분석하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

K-SAP은 최적의 조성 조건의 고화도출과 핵종의 적합성을 위해 2가지 실험으로 나누어 진행하였다. 각 원소의 전구체로 SiO_2 , $\text{Al}(\text{OH})_3$, $(\text{NH}_4)_2\text{H}_2\text{PO}_4$, B_2O_3 , Fe_2O_3 를 사용하였다. 각 전구체들을 목표한 비율로 혼합한 후 열처리 과정을 거쳐 K-SAP을 제작하였다.

제조된 K-SAP과 LiCl을 4:1(K-SAP4), 2:1(K-SAP2),

1.5:1(K-SAP1.5), 1:1(K-SAP1) 비율로 혼합하여 산화분위기에서 반응시켜 탈염화 한 후, 반응물을 산화분위기 1300°C 열처리하여 고화체로 제조하였다. 또한 방사성 모의 핵종의 영향을 보기 위하여 LiCl salt에 SrCl_2 , CsCl 을 비율별로 혼합하여 고화체를 같은 방법으로 제작하였다.

합성된 결과물들은 물질 특성 분석을 위하여 XRD, SEM, TGA 등을 수행하였다.

2.2 실험결과

K-SAP의 조성은 기존의 U-SAP의 조성을 유지하였다. 합성된 K-SAP은 SiO_2 입자에 Al과 P가 산화물 형태로 균일하게 코팅된 형상을 보이고 있다.

Fig. 1은 LiCl 함량 변화에 따른 탈염화 결과물의 TGA 분석을 실시한 결과이다. K-SAP2와 K-SAP4의 경우 1% 이하의 무게변화를 보이고 있다. 이는 탈염화가 잘 이루어 졌음을 보여준다. LiCl의 비율이 증가함에 따라 탈염화가 잘 이루어 지지 않음을 알 수 있다. K-SAP1의 경우 15%의 무게감량을 보이고 있다. 각 비율별의 탈염화 결과물에 대한 XRD 분석결과를 Fig. 2에 나타내었다. XRD 결과 또한 탈염 특성에 따라 변화를 보이고 있다. K-SAP1 에서는 LiCl과 lithium chloride borate 픽을 나타내고 있지만 K-SAP1.5부터 픽이 사라진다.

Fig. 3는 제작된 고화체의 형상을 나타내고 있다. 균일한 고화체가 제작되었다. 제작된 고화체의 XRD분석결과를 Fig. 4에 나타내었으며 특별한 peak이 나타나지 않아 균일하게 무결정질의 고화체가 제작되었음을 알 수 있다. 다만 K-SAP1.5에서만 Li_3PO_4 픽을 보이고 있는데 이는 LiCl의 비율이 높아 K-SAP과 미반응된 Li이 결정을 형성한 것으로 고려된다.

K-SAP2를 제작한 같은 방법으로 SrCl_2 와 CsCl 핵종을 함유한 고화체를 제작하였다. Fig. 5에 고화체 이미지를 나타내었다. 핵종의 비율이 달라짐에도 균일한 고화체를 합성할 수 있었으며, 같은 방법으로 분석을 수행하였다.

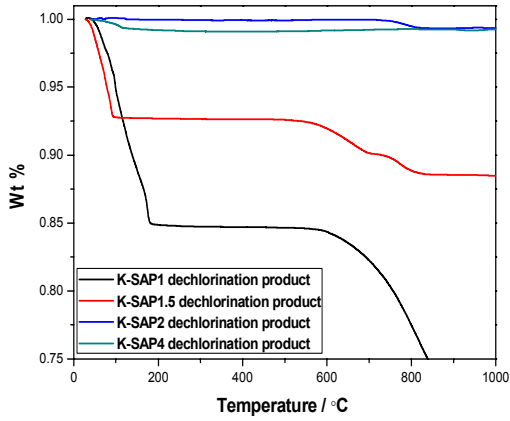


Fig. 1. TGA results of K-SAP dechlorination products.

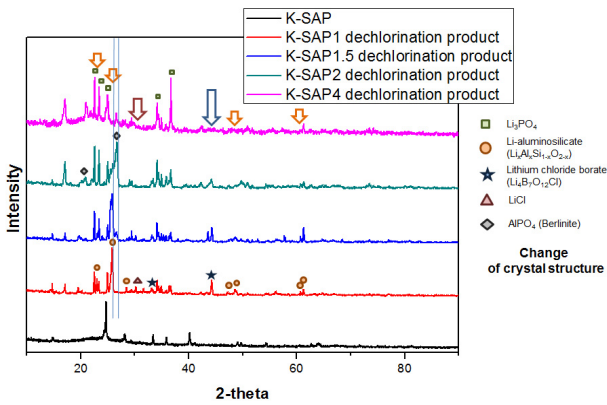


Fig. 2. XRD results of K-SAP1, K-SAP1.5, K-SAP2 and K-SAP4 dechlorination products.

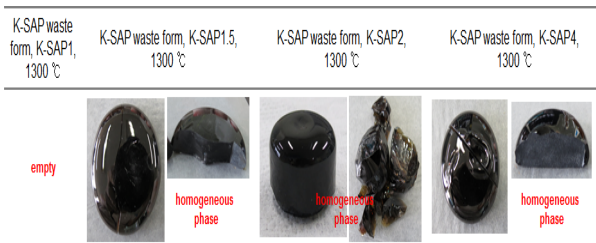


Fig. 3. Images of vitrification product with effect of composition (K-SAP waste form, 1300°C).

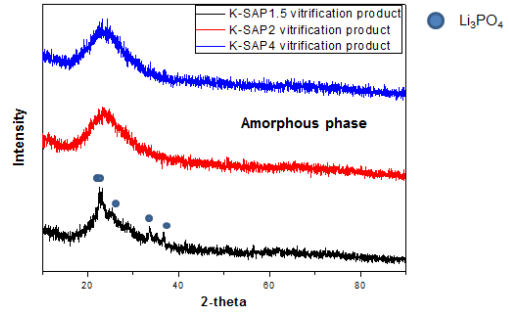


Fig. 4. XRD results of K-SAP1.5, K-SAP2 and K-SAP4 vitrification products.



Fig. 5. Images of vitrification product with SrCl₂ and CsCl.

3. 결론

본 연구에서는 기존의 U-SAP을 바탕으로 하여 K-SAP의 염폐기물 조성 변화를 통해 탈염화 반응 및 고화 특성을 살펴보았다. 경제적인 전구체를 활용하여 단순화된 공정으로 고화체의 제작에 성공하였다. 완성된 고화체의 특성을 분석하기 위하여 추가적인 침출특성 분석 및 물리적 특성 분석 연구가 수행되어야 할 것으로 고려된다.

4. 참고문헌

- [1] H. -S. Park, I. -T. Kim, Y. -J. Cho, H. -C. Eun and H. -S. Lee, "Stabilization/Solidification of Radioactive Salt Waste by Using $x\text{SiO}_y\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}_2\text{P}_2\text{O}_5$ (SAP) Material at Molten Salt State", *Environ. Sci. Technol.*, 42, 9357~9362 (2008).