

U-SAP 조성에 따른 LiCl 염폐기물 고화체의 미세구조변화 및 침출특성 영향 평가

김나영*, 조인학, 이기락, 최정훈, 은희철, 박환서, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*kny@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원에서는 사용후핵연료로부터 U 및 TRU 등의 금속을 회수하여 SFR(Sodium Fast Reactor)의 연료로 재사용하여, 고방사성 폐기물의 발생량 및 처분면적을 줄이는 목적으로 파이로프로 세싱공정을 개발하여 현재 공학규모 공정장치 시험 및 성능검증을 수행중에 있다. 이러한 파이로프로 세싱 공정에서는 Cs과 Sr등의 핵종들을 함유한 LiCl 염폐기물과 희토류 방사성 핵종들을 포함하고 있는 공용염폐기물이 발생하는데 이러한 폐기물들은 물에 대한 용해도가 높아 모두 안정한 형태로 고화 처리된 후 최종 처분되어야 한다. 본 연구팀에서는 이러한 염폐기물을 안정한 형태의 고화체로 제조하기 위하여 합성무기복합체(SAP: SiO₂-Al₂O₃-P₂O₅)를 제조하여 금속염화물 형태의 염폐기물을 탈염화 반응을 거쳐 열적으로 안정한 생성물로 전환한 후 유리매질과 함께 소결하여 안정한 고화체를 제조하는 기술을 개발하였으며[1,2], 현재에는 부가적인 유리매질의 주입 없이 탈염화 반응 후 바로 고화를 수행할 수 있는 조성이 조정된 합성무기 복합체(U-SAP: Universal SAP)을 개발하여 염폐기물 고화공정을 단순화하고자 하였다. 이러한 U-SAP은 조성과 반응비 및 제조조건에 따라 미세구조와 내침출특성이 변화할 수 있으며, 이에 대한 영향을 확인하는 것이 필요하다.

본 연구에서는 U-SAP의 조성을 변화시키면서 LiCl 염폐기물의 고화특성을 평가함으로써, 건전성과 균질성이 높은 고화체를 제조하기 위한 U-SAP의 조성조건을 평가하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

무기복합체 U-SAP의 원료물질로서 tetraethyl orthosilicate (TEOS), aluminium(III) chloride (AlCl₃), phosphoric acid (H₃PO₄), FeCl₃ 그리고 boric acid를 사용하여, 에탄올/증류수에 녹인 혼

합물을 솔젤법으로 70°C의 전기오븐에서 겔화시켰다. 70°C에서 약 3일간 숙성하고, 90°C 및 110°C에서 약 4일간 서서히 건조시킨 후, 650°C에서 약 12시간 열처리하여 제조하였다. 본 연구에서 제조된 U-SAP의 조성은 각 원소 산화물의 비로 조정하였으며, Table 1에 나타내었다. Table 1에 나타낸 U-SAP의 기준조성은 이전의 연구결과에서 설정된 조성[3]을 바탕으로 Al₂O₃과 B₂O₃의 조성을 11~23wt%와 5~17wt%로 각각 변화시켜 고화체의 형구학적 특성 및 침출특성을 평가하고자 하였다. 시험에 사용된 모의 염폐기물은 LiCl 90wt%, CsCl 6.8wt%, SrCl₂ 3.2wt% 조성을 가진 것이며, 고화체를 제조하기에 앞서 제조된 다양한 조성의 U-SAP을 이용하여 650°C에서 모의 염폐기물의 탈염화반응을 수행하였으며, 탈염화반응 후 얻어진 시료를 환원분위기하 1150°C에서 4시간 동안 열처리하여 고화체로 제조하였다.

Table 1. Compositions of U-SAP used in this study

Test No.	SiO ₂	Al ₂ O ₃	P ₂ O ₅	B ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	
Standard	A	45	17	25	11	2
	B	42	23	23	10	2
A1	C	43	20	24	11	2
	D	47	14	26	11	2
	E	48	11	27	12	2
	F	47	18	27	5	2
B	G	48	18	26	8	2
	H	43	16	24	14	2
	I	42	16	23	17	2

2.2 실험결과

Fig. 1은 다양한 조성의 U-SAP을 이용하여 제조한 고화체의 SEM 분석결과를 나타낸 것이다. Fig. 1에서 보는바와 같이 U-SAP내 Al₂O₃의 함량이 17~23wt%의 경우에는 비교적 균질한 단면을 얻을 수 있었으며, 그에 비하여 Al₂O₃ 함량이 낮은 경우(D,E)에는 단면에서 상분리와 기공이 존재함을 확인하였다. 또한, B₂O₃ 함량 변화의 경우에는 낮은 함량인 5~8wt%에서 상분리가 나타났으나, 함량이 증가할수록 고화체가 균질한 형상을 보이는 것

으로 확인되었다.

침출시험 분석결과에서는 B₂O₃의 함량을 17wt%로 증가시킨 I의 경우에는 비교적 많은 양의 B₂O₃가 분석되었으며, 반대로 5wt%로 감소시킨 경우에도 다량의 B₂O₃가 침출되었다. Cs의 경우 B₂O₃의 함량을 5wt%로 감소시킨 경우와 마찬가지로 높은 침출률을 보였으며, 그 외에 주요 핵종 중 Li의 침출률은 모든 반응에서 비슷한 결과가 나타났다. 이러한 점들을 미루어보아 Standard를 기준으로 적정범위를 벗어나게 되면 고화체의 화학적 안정성이 낮아져 침출률이 높아진 것으로 판단된다.

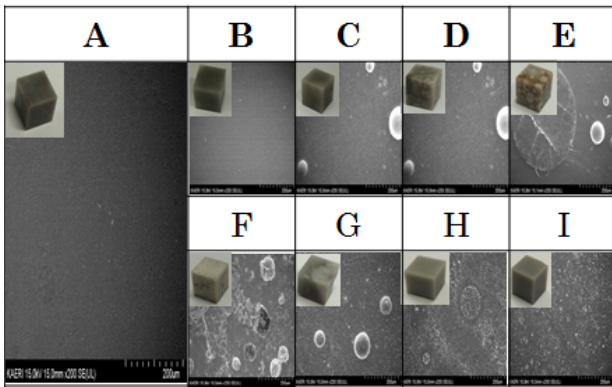


Fig. 1. Photos of consolidated forms.

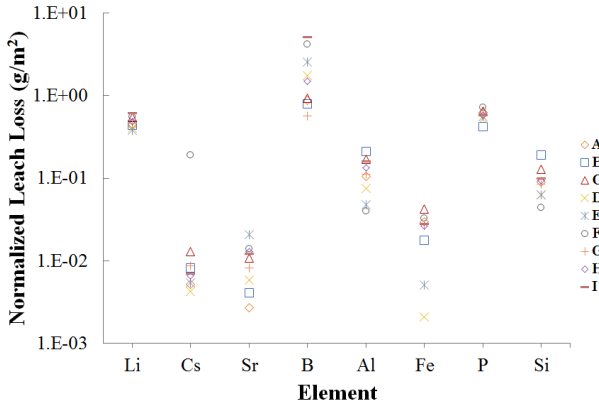


Fig. 2. Result of PCT-A test for consolidated forms.

3. 결론

본 연구에서는 U-SAP 내 Al₂O₃와 B₂O₃의 조성 변화가 LiCl 염폐기물 고화체의 형구학적 특성 및 내침출성에 미치는 영향을 살펴보았으며, Al₂O₃와 B₂O₃의 조성이 비교적 높을수록 고화체가 비교적 균질하였고, Al₂O₃과 B₂O₃의 함량이 U-SAP 기준조성과 가까울수록 침출율이 낮게 나타남을 확인할 수 있었다.

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).
- [2] H. -S. Park, I. -H. Cho, H. -C. Eun I. -T. Kim, Y. -J. Cho and H. -S. Lee, "Characteristics of Wasteform Composing of Phosphate and Silicate to Immobilize Radioactive Waste Salts", *Environ. Sci. Technol.*, 45, 1932~1939 (2011).
- [3] 안수나, 조인학, 김인태, 박환서, "U-SAP 조성에 따른 연화물계 방사성폐기물의 안정화 및 고형화 특성", 한국방사성폐기물학회 춘계학술 발표회 논문요약집, 293-294(2013).