

K-SAP을 활용한 LiCl 방사성 염폐기물 고화체 합성 및 물리화학적 특성 분석

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

1. 서론

최근 핵폐기물을 재활용하기 위한 방법으로 건식 법인 파이로 프로세싱이 주목받고 있다. 일반적으로 파이로 프로세싱에는 연속적 electrolytic process가 수행되는데 이 때 전해질로 LiCl과 LiCl-KCl 공용염이 사용되며 방사성을 띠는 염폐기물이 발생하게 된다. 원자력연구원에서는 이러한 염폐기물을 해결하기 위하여 SAP을 활용한 유리고화체 제조법을 개발하였다[1,2]. 본 연구에서는 개발한 SAP을 개량하여 간단한 방법으로 대량처리를 할 수 있도록 K-SAP을 개발하였으며, 이를 LiCl 모의 염폐기물과 다양한 비율로 혼합하여 고화체를 합성하였다. 고화체의 특성을 평가하기 위하여 물리적, 화학적 분석을 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험 방법

2.1.1 K-SAP 합성

기존 SAP에서 유리질 40% 비율로 조성을 설정하여 SiO₂, Al(OH)₃, (NH₄)₂H₂PO₄, B₂O₃, Fe₂O₃를 혼합하였다. 모든 시약은 reagent grade를 사용하였다. 혼합된 물질을 500도에서 열처리 하여 AlPO₄ 및 SAPO-20 물질을 함유한 파우더로 합성하였다.

2.1.2 탈염 및 고화체 제작

모의 방사성 폐기물은 LiCl에 모의핵종 (SrCl₂, CsCl)을 0wt%, 10wt% 20wt%, 30wt% 비율로 혼합하여 합성하였다. 제조한 모의 방사성 폐기물과 K-SAP을 다양한 비율로 혼합하여 고화체 제조에 사용하였다. K-SAP/salt 비율을 K-SAP 뒤에 표시하였다. 그리고 비율 2를 기준으로 핵종을 넣은 양을 K-SAP2-1 (10wt%), K-SAP2-2 (20wt%), K-SAP2-3 (30wt%) 으로 표현하였다. 혼합된 파우더는 650도에서 열처리 하여 탈염 과정을 수행하였으며 다시 냉각된 파우더는 1300도에서 열처리

하여 유리화 과정을 수행하였다. 탈염 생성물과 고화체의 물리 화학적 특성 분석을 위하여 XRD, TGA, SEM 등의 다양한 분석을 수행하였다.

2.2 실험 결과

Fig. 1은 탈염공정후 결과물의 XRD 분석을 수행한 결과이다. XRD 결과에서는 K-SAP1 sample의 경우 미반응한 LiCl 과 Lithium chloride borate가 발견된다. Li-aluminosilicate가 형성된 것을 알 수 있다. 비율이 올라갈수록 탈염되지 않은 Cl 성분은 없어지며 Li₃PO₄ 와 AlPO₄가 형성되는 것을 알 수 있다. 이는 LiCl이 반응하지 못한 성분들 끼리 반응한 것으로 탈염을 시킬 수 있는 능력 충분히 사용되지 못한 것을 나타낸다.

Fig. 2는 탈염공정 후 결과물의 TGA 결과를 나타내었다. K-SAP 1의 경우는 15% 정도의 무게 감량을 보였으며 K-SAP1.5의 경우는 4.5%의 무게 감량을 나타내었다. 무게감량은 미반응된 Cl이 존재함을 의미한다. K-SAP2 이상에서는 무게 감량이 나타나지 않아 탈염반응이 완전히 일어났음을 알 수 있다. 적절한 비율은 미반응된 Cl이 존재하지 않으면서 K-SAP이 가지고 있는 탈염능력이 충분히 사용되었을 경우로 비율2가 최적화 된 것으로 볼 수 있다.

탈염된 결과물은 다시 유리화 공정을 거쳐 최종적으로 고화체로 제작되었다. 제작된 고화체의 거시적 형상을 Table 1에 나타내었다. K-SAP1을 제외하고 모든 조성에서 균일한 유리질의 고화체가 형성되는 것을 알 수 있다. 이는 폐기물의 특성상 일정한 조성의 폐기물이 발생되기 어려운 환경에서 매우 좋은 특성을 나타낸다. 넓은 범위의 조성 변화에서도 고화체로서 형상을 잘 유지하기 때문이다. 제작된 고화체의 단면을 SEM 분석을 수행하여 Fig. 3에 나타내었다. SEM 분석을 통하여 모든 고화체가 micropore 또한 존재하지 않으며 매우 dense한 형상을 나타냄을 알 수 있다. 이는 침출 수와의 접촉할 수 있는 표면적을 감소시킴으로서 고화체의 내구성을 향상 시키는 특성을 보여준다. XRD 분석또한 수행되었으며 모든 고화체가 비결정질의 유리질 형상을 나타내고 있었다.

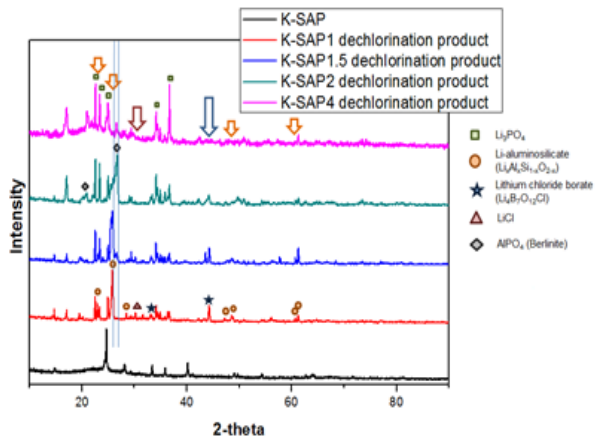


Fig. 1. XRD results of K-SAP1, K-SAP1.5, K-SAP2 and K-SAP4 dechlorination product.

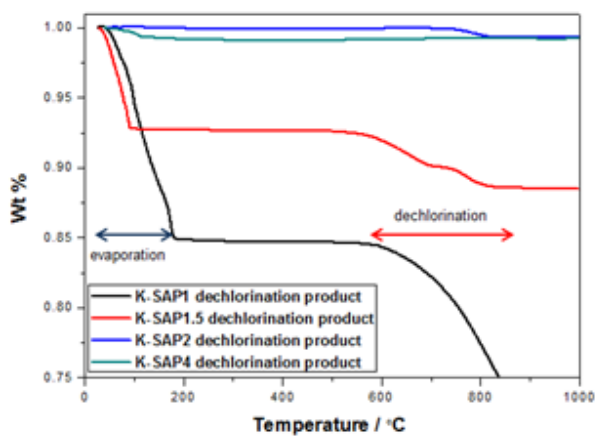


Fig. 2. TGA results of K-SAP dechlorination products.

Table 1. Images of vitrification product

K-SAP waste form, K-SAP1, 1300 °C	K-SAP waste form, K-SAP1.5, 1300 °C	K-SAP waste form, K-SAP2, 1300 °C	K-SAP waste form, K-SAP4, 1300 °C
empty	homogeneous phase	homogeneous phase	homogeneous phase
waste form, K-SAP2, 1300 °C	waste form, K-SAP2-1, 1300 °C	waste form, K-SAP2-2, 1300 °C	waste form, K-SAP2-3, 1300 °C
homogeneous phase	homogeneous phase	homogeneous phase	homogeneous phase

3. 결론

기존의 SAP 고화체를 개선하여 간단한 방법으로 완전한 유리질의 고화체를 제작하는 데 성공하였다. 추가적으로 IR 분석 및 침출특성 분석을 수행하여 K-SAP 고화체의 구조분석 및 화학적 내구성 분석을 수행할 계획이다.

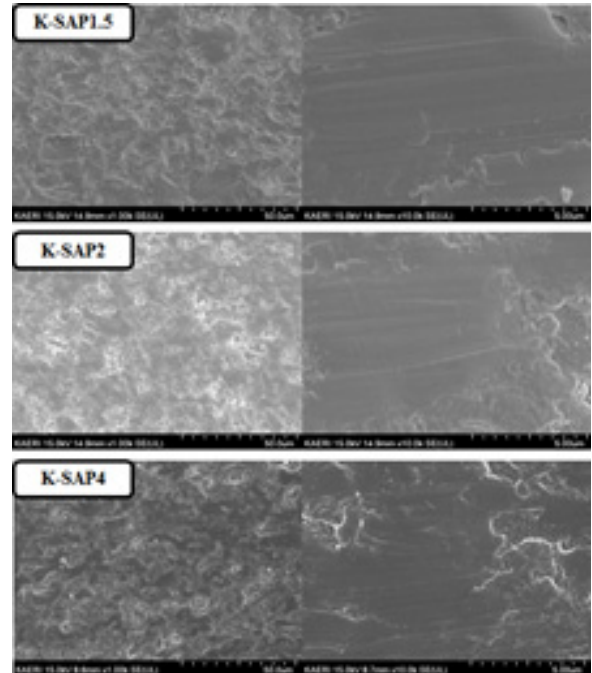


Fig. 3. SEM images of K-SAP1.5, K-SAP2 and K-SAP4 vitrification product.

4. 참고문헌

- [1] H. Park, I. Kim, Y. Cho, H. Eun, and H. Lee, Environ. Sci. Technol. 2008 42 9357-9362.
- [2] S.-N. Ahn, H.-S. Park, I.-H. Cho, I.-T. Kim and Y.-Z. Cho, J. Kor. Rad. Waste Soc., 2012, 10(1), 27.