자원환경지질, 제35권, 제2호, 97-102, 2002
Econ. Environ. Geol., 35(2), 97-102, 2002

고준위 핵폐기물의 고정화를 위한 메트릭스 개발 : Ce-파이로클로어 합성 연구

채수천[1]* · 장영남[1] · 배인국[1] · Yudintsev, S.V.[2]
[1]한국지질자원연구원, [2]러시아 광물광상학연구소

Development of Matrix for the Immobilization of High Level Radioactive Waste : Study on the Synthesis of Ce-pyrochlore

Soo-Chun Chae[1]*, Youn-Nam Jang[1], In-Kook Bae[1] and Yudintsev, S.V[2]
[1]Department of Geology Division, Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources, Taejon 305-350, Korea
[2]Institute of Geology of Ore Deposits, Petrography, Mineralogy and Geochemistry

Ce-pyrochlore ($CaCeTi_2O_7$) was synthesized to study its properties and phase relations in CaO-CeO_2-TiO_2 system because Ce-pyrochlore was known as a promising material for the immobilization of radioactive actinide. The samples were prepared from the high purity starting materials under the pressure of 200~400 kg/cm^2 at room temperature, and annealed at 1000~1500°C. The Synthesized samples were analysed and identified with XRD and SEM/EDS methods. The optimal formation condition of Ce-pyrochlore was at 1300°C under O_2 atmosphere and the chemical composition of it was $Ca_{1+x}Ce_{1-x}Ti_{2-y}O_{7-x-2y}$ (x=0.03~0.05, y=0.02~0.04). At temperature between 1300~1400°C, Ce-pyrochlore underwent rapidly the incongruent decomposition to perovskite. Ce-perovskite, a partial solid solution between perovskite and loparite ($Ce_{0.66}TiO_3$), was observed as a major phase above 1400°C.

Key words: pyrochlore, perovskite, immobilization, incongruent, loparite

Ce-파이로클로어(Ce-pyrochlore; $CaCeTi_2O_7$)는 장주기 방사성 폐기물인 악티나이드 원소들을 고정화시킬 수 있는 새로운 물질이므로 Ce-파이로클로어를 합성하여 상평형 관계 및 특성을 연구하였다. 혼합된 시료는 상온에서 200-400 kg/cm^{2}의 압력으로 성형한 후, 1000~1500°C 범위에서 소결온도 및 분위기를 변화시키면서 소성하였다. 합성된 시료는 XRD, SEM/EDS를 사용하여 상분석과 정량분석을 실시하였다. 실험결과, Ce-파이로클로어의 최적 합성조건은 산소분위기 하에서, 1300°C로 소결하였을 때였으며, 이때의 화학조성은 $Ca_{1+x}Ce_{1-x}Ti_{2-y}O_{7-x-2y}$(x=0.03~0.05, y=0.02~0.04)으로써 비화학양론적인 특성을 보였다. Ce-파이로클로어는 1300~1400°C에서 빠른 비조화 분해현상을 나타내었으며, 1400°C 이상에서는 페로브스카이트(perovskite)와 로파라이트(loparite; $Ce_{0.66}TiO_3$) 사이의 부분 고용체인 Ce(III)-페로브스카이트가 주요상으로써 관찰되었다.

주요어: 파이로클로어, 페로브스카이트, 고정화, 비조화, 로파라이트

1. 서 언

핵발전소에서 발생하는 방사성 폐기물을 재처리하면 슬러지 상태의 고준위 폐기물(HLW)이 생성되는데 현재 borosilicate 혹은 aluminophosphate 유리 등으로 고정화시키는 방법이 사용되고 있으나 유리질 매체는 시간이 경과되면 결정화되어, 핵종의 보유능력이 저하된다. 특히, 장주기 방사능 동위원소를 함유하고 있는 방사성 폐기물의 경우, 유리질 매체의 한계는 더욱 확실하므로 선진국에서는 새로운 매트릭스 개발에 노력하고 있다. 유리질 매체의 대안으로, SYNROC (Ringwood *et al.*, 1988)을 비롯한 다양한 결정질 매트릭스가 연구개발되어 적용시험 단계에 있다. 특히, 고준위 폐기물 내의 악티나이드 원소 및 Zr을 함유할 수 있는 결정질 매트릭스 중에서 형석 결정구조로부터 유도되는 초격자구조의 파이로클로어와 zirconolite 등이

*Corresponding author: chae@kigam.re.kr

매우 유망한 것으로 보고되고 있다(Wang *et al.*, 1999). 이들은 격자에 상당량의 +3가 및 +4가의 악티나이드 원소를 고용시킬 수 있으며, 또한 방사능 붕괴시(alpha-decay), 높은 화학적 내구성과 안정성을 보유하고 있다. 실례로서 미국의 Lawrence Livermore National Laboratory에서 약 17 톤의 Pu를 고정화하기 위해 파이로클로어를 성공적으로 적용시킨 바가 있다(Ebbinghause *et al.*, 1998). 이때 사용된 파이로클로어의 화학조성은 50 $CaUTi_2O_7$-25 $CaPuTi_2O_7$-25 $Gd_2Hf_2O_7$(단위 : mole%) 이며, 이 고용체 내에는 약 12 wt.% PuO_2 및 24 wt.% UO_2가 포함될 수 있다. 한편, 유리질 매트릭스인 경우 Pu에 대하여 겨우 1 wt.% 정도의 낮은 고정한계를 가진다.

장주기형 방사성 폐기물의 고정화를 위해 사용되는 결정질 매트릭스는 hot-pressing(Ringwood, 1985), sintering(Ebbinghaus *et al.*, 1995), inductive melting (Sobolev *et al.*, 1995) 등의 방법으로 제조되며 특히, sintering 혹은 inductive melting법이 결정질 매트릭스를 산업적 규모로 제조하는데 적합한 것으로 보고되고 있다.

고준위 폐기물의 주요 방사성 원소인 +4가의 악티나이드에 대해 유망한 imitator는 이온반경이 상호 유사한 Ce^{+4}이며, Ce-파이로클로어가 효율적 매트릭스일 가능성에도 불구하고, 이에 관한 연구보고는 거의 없다. 따라서 본 연구에서는 Ce-파이로클로어를 합성하여 공존하는 안정상들의 상평형 관계 및 특성에 대하여 연구하고자 하였다.

2. 실험방법

초기출발물질은 $CaCO_3$(High Purity Chemicals, 4N), TiO_2(Rare Metallic Co. Ltd, 3N) 및 CeO_2 (Johnson Mattey, 3N) 등 순수한 2 성분계 화합물을 정밀저울로 평량하여, Ce-파이로클로어($CaCeTi_2O_7$) 조성으로 혼합하였다. 혼합된 시료는 상온에서 200~400 kg/cm^2의 압력으로 성형한 후, 1000~1500°C 범위에서 반응시켰다. 소결반응은 분위기를 조절할 수 있는 superkanthal 히터가 장착된 실린더형 전기로에서 5-50 시간 동안 실행되었다. 일부 시료의 경우, 900~1100°C에서 약 5-10시간동안 하소작업을 추가로 실시하였다. 합성된 시료의 격자상수 및 상동정을 위하여, 흑연 모노크로메터(monochrometer)가 부착된 Phillip사(스웨덴)의 X'pert MPD X-선 분말회절기(X-ray powder diffractometer, XRD)를 사용하였다. Cu-Kα선 튜브를 사용하였고, 가속전압 및 전류는 각각 40 kV 및 30 mA이었다. 또한 각 상들에 대한 분포양상 및 성분분석을 위해, SEM/EDS(JSM-5300/Oxford Link ISIS EDS)장치를 이용하였다. 이때의 가속전압은 25 kV, 빔의 크기는 1 mm였으며, 오차범위는 0.2~0.4 wt.%였다.

3. 합성 실험결과

3.1. XRD 분석 결과

성형된 시료는 공기 및 산소분위기 하에서 소결온도 및 시간을 변화시키면서 실험을 실시하였다(Fig. 1). 각 상의 함량은 XRD 패턴중 주회절선의 상대적 회절강도로부터 개략적으로 표시하였다.

공기 중에서 소결시(Fig. 1a), 1000~1100°C 범위에서는 Ce-페로브스카이트((Ca,Ce)TiO_3), 금홍석(rutile; TiO_2), 세리아나이트(cerianite; CeO_2), 및 Ce-파이로클로어 등이 관찰되었다. Ce-파이로클로어의 함량은 온도에 비례하여 증가하였고, 1200°C에서 다른 모든 상들보다 우세하였다. 1300°C에서는 금홍석이 완전히 사라지고, Ce-페로브스카이트와 세리아나이트의 함량이 다른 온도에서의 결과와 비교할 때, 가장 낮은 값을

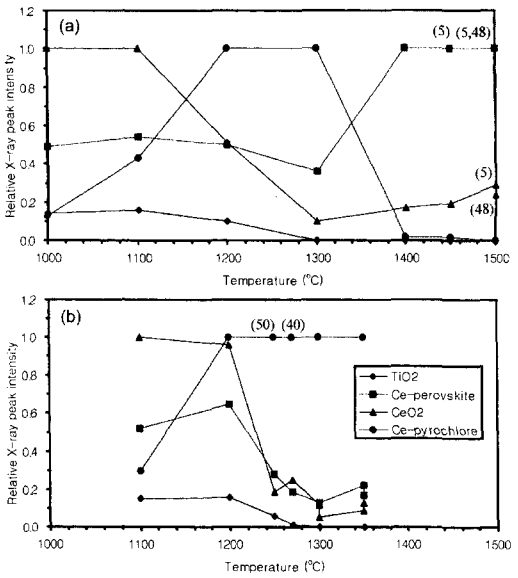

Fig. 1. Dependance of relative intensities of the stable phase assemblage with the sintering temperature (a) under air and (b) under O_2 condition. Numbers in parenthesis indicate heating time (hours), and the rest of symbols without numbers indicate that heating time of 20 hours.

보이기 때문에, 이 온도가 Ce-파이로클로어의 최적 성장온도로 판단된다. 1400 및 1450°C까지 온도를 상승시키면, 상당량의 Ce-파이로클로어가 감소하여, 1500°C에서는 궁극적으로 소멸되며, Ce-페로브스카이트와 미량의 세리아나이트만이 존재하였다. 이때, 세리아나이트의 상대적인 피크의 강도는 소결시간을 5시간에서 48시간으로 증가시켜도 변화되지 않았다.

산소 분위기 하에서(flow rate : 200 cc/min) 소결한 시료의 경우(Fig. 1b), Ce-파이로클로어가 1100°C에서부터 관찰되었고 1200°C에서 주된 상이 되지만, 세리아나이트, Ce-페로브스카이트 및 미량의 금홍석이 존재하였다. 1300°C에서는 금홍석이 완전히 사라지고, Ce-페로브스카이트와 세리아나이트가 점차 감소하는 결과를 보였으며, 1350℃ 부터는 세리아나이트와 Ce-페로브스카이트가 점차 증가되었다.

상술한 XRD 자료로부터, Ce-파이로클로어는 적어도 1000°C에서 생성되기 시작하였으며, 최적 생성온도 조건이 1300°C임을 확인하였다. 또한 1300°C에서, 공기 중에서의 실험결과에 비해 산소분위기 하에서 소결하면 세리아나이트 및 Ce-페로브스카이트의 함량이 현저하게 낮으므로, 보다 순수한 Ce-파이로클로어가 합성되었다. Ce-파이로클로어에 대한 XRD 자료는 아직까지 발표된 바 없다. Fig. 2는 1300°C와 1400°C에서의 Ce-파이로클로어와 Ce-페로브스카이트의 XRD 패턴을 보여주고 있다. 최소자승법을 사용하여 Ce-파이로클로어의 격자상수를 측정한 결과, 온도 및 분위기에 따라 차이가 있으나, 대체적인 격자상수의 범위는 10.139~10.152Å으로, 파이로클로어의 한 종류인 $Tb_2Ti_2O_7$ (No. 41-363 : 10.156Å and No. 23-565 : 10.145Å in JCPDS card)와 유사하였다.

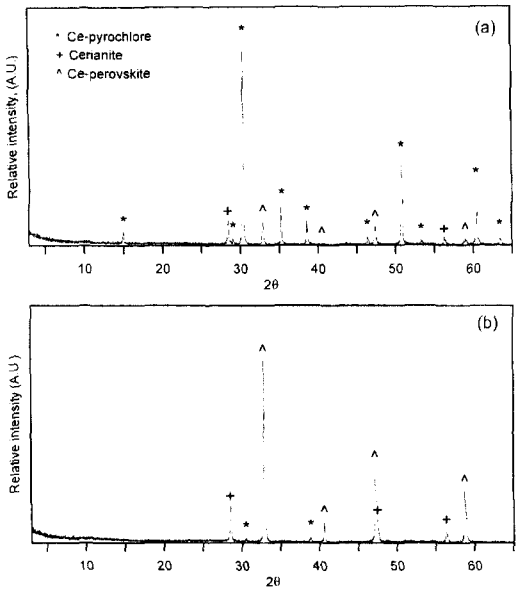

Fig. 2. XRD patterns of Ce-pyrochlore and Ce-perovskited wich are sintered at (a) 1300°C and (b) 1400°C.

3.2. SEM/EDS에 의한 상동정 및 화학성분

소결된 시료는 주사전자현미경(SEM)이 장착된 정량분석기(EDS)에 의해 상관찰 및 성분분석을 실시하였다. 1300°C에서 소결된 시료의 경우, 기질부는 Ce-파이로클로어로 구성되며, 15 μm 이하인 Ce-페로브스카이트와 25 μm 이하인 세리아나이트가 관찰되었다(Fig. 3). 이와는 대조적으로 1500°C에서 소결된 시료의 경우, Ce-파이로클로어 대신 Ce-페로브스카이트가 기질부를 형성하고, 10 μm이하의 세리아나이트와 다량의 기공이 산재되어 있었다(Fig. 4).

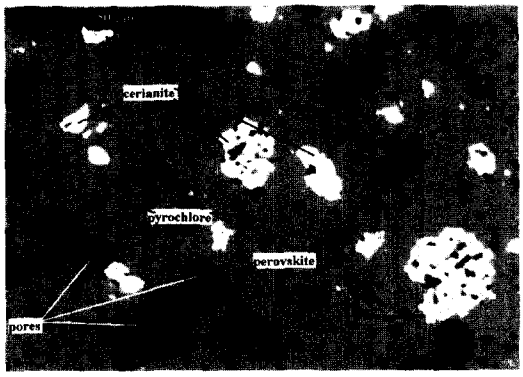

Fig. 3. Scanning electron microphotograph of samples sintered at 1300°C.

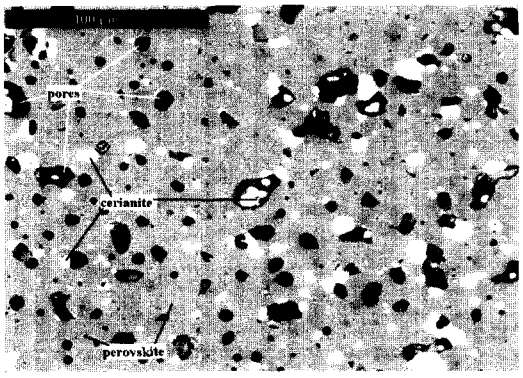

Fig. 4. Scanning electron microphotograph of sample sintered at 1500 °C.

Table 1. Chemical compositions of Ce-pyrochlore and Ce-perovskite.

No.	Heating		Chemical composition*							
	Temp.	hours	Ce-pyrochlore				Ce-Perovskite			
			Composition	Ce/Ti	Ca/Ti	Ce/Ca	Composition	Ce/Ti	Ca/Ti	Ce/Ca
Under air atm.										
LGZ-73	1200	20	$Ca_{1.01}Ce_{0.83}Ti_{2.06}O_{6.8}$	0.40	0.49	0.82	$Ca_{0.84}Ce_{0.15}Ti_{0.97}O_3$	0.15	0.87	0.18
(air)			$Ca_{1.02}Ce_{0.79}Ti_{2.1}O_{6.8}$	0.37	0.50	0.77				
LGZ-62	1300	20	$Ca_{1.01}Ce_{0.96}Ti_{1.94}O_{6.8}$	0.49	0.52	0.95	$Ca_{0.7}Ce_{0.24}Ti_{0.97}O_3$	0.25	0.72	0.34
(air)			$Ca_{0.98}Ce_{0.95}Ti_{1.97}O_{6.8}$	0.48	0.49	0.97	$Ca_{0.66}Ce_{0.27}Ti_{0.97}O_3$	0.28	0.68	0.41
LGZ-96	1400	20	$Ca_{1.06}Ce_{0.88}Ti_{1.99}O_{6.8}$	0.44	0.53	0.83	$Ca_{0.57}Ce_{0.32}Ti_{0.98}O_3$	0.33	0.58	0.56
(air)			$Ca_{1.04}Ce_{0.87}Ti_{2.01}O_{6.8}$	0.43	0.51	0.84	$Ca_{0.57}Ce_{0.31}Ti_{0.98}O_3$	0.32	0.58	0.54
LGZ-21	1450	5					$Ca_{0.55}Ce_{0.32}Ti_{0.98}O_3$	0.33	0.56	0.58
(air)							$Ca_{0.56}Ce_{0.33}Ti_{0.98}O_3$	0.34	0.57	0.59
LGZ-15	1500	5					$Ca_{0.55}Ce_{0.33}Ti_{0.97}O_3$	0.34	0.57	0.60
(air)							$Ca_{0.54}Ce_{0.34}Ti_{0.97}O_3$	0.35	0.56	0.63
							$Ca_{0.56}Ce_{0.33}Ti_{0.97}O_3$	0.34	0.58	0.59
LGZ-81	1500	48					$Ca_{0.57}Ce_{0.33}Ti_{0.96}O_3$	0.34	0.59	0.58
(air)							$Ca_{0.56}Ce_{0.33}Ti_{0.97}O_3$	0.34	0.58	0.59
Under O_2 atm.										
LGZ-77	1200	20	$Ca_{1.04}Ce_{0.87}Ti_{2.01}O_{6.8}$	0.43	0.51	0.84				
(O_2)										
LGZ106	1270	40	$Ca_{1.05}Ce_{0.94}Ti_{2.04}O_7$	0.46	0.51	0.90	$Ca_{0.87}Ce_{0.14}Ti_{0.96}O_3$	0.15	0.91	0.16
(O_2)			$Ca_{1.03}Ce_{0.99}Ti_2O_7$	0.49	0.51	0.96	$Ca_{0.85}Ce_{0.13}Ti_{0.97}O_3$	0.13	0.88	0.15
			$Ca_{1.07}Ce_{0.97}Ti_{1.99}O_7$	0.48	0.53	0.91				
LGZ128	1300	20	$Ca_{1.04}Ce_{0.98}Ti_{1.99}O_7$	0.49	0.52	0.94	$Ca_{0.81}Ce_{0.18}Ti_{0.96}O_3$	0.19	0.84	0.22
(O_2)			$Ca_{1.06}Ce_{0.97}Ti_2O_7$	0.48	0.53	0.92	$Ca_{0.81}Ce_{0.17}Ti_{0.97}O_3$	0.18	0.84	0.21
LGZ109	1350	40	$Ca_{1.01}Ce_{0.98}Ti_{2.01}O_7$	0.48	0.50	0.97	$Ca_{0.78}Ce_{0.2}Ti_{0.96}O_3$	0.21	0.81	0.26
(O_2)			$Ca_{1.02}Ce_{0.99}Ti_2O_7$	0.49	0.51	0.97	$Ca_{0.74}Ce_{0.22}Ti_{0.96}O_3$	0.23	0.77	0.30
			$Ca_{1.06}Ce_{1.01}Ti_{1.96}O_7$	0.51	0.54	0.95	$Ca_{0.76}Ce_{0.2}Ti_{0.97}O_3$	0.21	0.78	0.26

*Chemical compositions were analysed by EDS.

합성된 Ce-파이로클로어 및 Ce-페로브스카이트를 EDS로 정량분석한 결과는 Table 1에 표시하였다. Ce/Ti 및 Ce/Ca 비율은 1270-1350°C에서 합성된 Ce-파이로클로어에서 가장 높은 값을 보이는데(Fig. 5), 이러

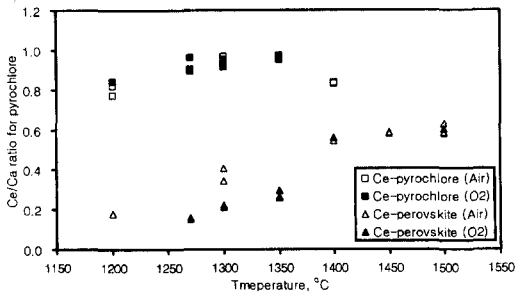

Fig. 5. Variation of Ce/Ca ratio with temperature in Ce-pyrochlores and Ce-perovskites.

한 현상은 세리아나이트 및 Ce-페로브스카이트의 X-선 회절강도의 증감결과와 일치한다. 예를 들면, 세리아나이트의 회절강도는 1200°C에 비해 1300°C에서 현저한 감소를 보이므로써(Fig. 1), 이 온도에서, 세리아나이트가 Ce-파이로클로어 형성을 위해 소비되었으며, 1270~1350°C에서 Ce-파이로클로어에 함유될 수 있는 Ce의 최대치를 나타내는 것으로 해석이 가능하다. 한편 Ce-페로브스카이트의 경우, 1400°C까지 온도증가에 비례하여 Ce/Ti과 Ce/Ca 비율은 증가하는데 반하여 Ca/Ti 비율은 감소함으로써, Ce 이온이 페로브스카이트 결정구조로 이동되었음을 지시한다. 그러나 1400°C 이상에서는 이들 값들 사이의 큰 변화를 보이지 않음으로써, 고용한계에 도달된 것으로 판단된다. 또한 Ce-파이로클로어의 경우, Ce/Ca 비가 분위기에 따라 큰 변화를 보이지 않지만, Ce-페로브스카이트의 Ce/Ca 비는 산소분위기에서 소결된 시료가 공기 중에서의 시료

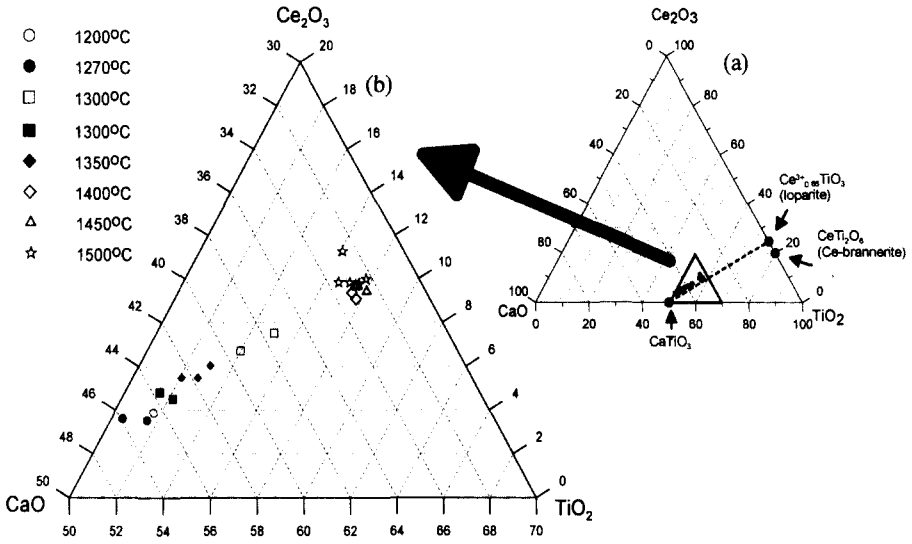

Fig. 6. Compositional variations of Ce-perovskites, a solid solution of loparite and $CaTiO_3$ in the system $CaO-Ce_2O_3-TiO_2$. Dotted line indicates imaginary solid solution boundary between perovskite and loparite. The symbols (○ , □ , ◇ , △ , ☆) represent the samples treated in air and ● , ■ , ◆ , under O_2 atmosphere.

에 비해 낮았다. 이러한 결과는, 분위기에 따라 Ce-파이로클로어의 생성량은 영향을 받지만, 포함된 Ce의 함량은 크게 영향을 받지 않는다는 사실을 지시하고 있다. 그러나 Ce-페로브스카이트의 경우에는 양적인 면은 물론 Ce의 함량도 분위기에 따라 크게 영향을 받고 있음을 보였다(Fig. 5).

4. 토 의

Ca-Ce-Ti-O system에 있어 주시할 점은 Ce-페로브스카이트와 Ce-파이로클로어의 거동이다. Ce-파이로클로어의 경우, 1000°C이하에서 생성되기 시작하며, 1200°C 부근에서 주된 상으로써 관찰되다가, 1500°C에서는 완전히 사라지므로(Fig. 1) 결과적으로 비조화 분해특성(incongruent decomposition)을 나타낸다. 이에 반해, Ce-페로브스카이트는 1000~1500°C 온도범위에서 안정상이지만, 특히 Ce-파이로클로어가 불안정해지는 1400°C 이상의 고온영역에서 주된 상으로 존재하는 특징을 보인다.

Ce-파이로클로어에 대한 정량분석 결과, 1200 및 1400°C보다는 1300°C 부근에서 Ce의 함량이 높았으며(Fig. 5), 이는 XRD의 결과와 일치된다. 즉, 1300°C까지 CeO_2 성분은 Ce-파이로클로어의 생성을 위해 소비되고, 1400°C 이상의 고온에서는 Ce-파이로클로어의 불안정 때문에 Ce-파이로클로어 내의 Ce 성분이 Ce-페로브스카이트와 세리아나이트로 재배분되는 것으로 해석된다. 이와 같이, Ce-파이로클로어 및 Ce-페로브스카이트 안정영역의 온도의존성은 Ce의 산화 및 환원과 관계가 있는 것으로써 1400°C 이상의 고온범위에서는 Ce(IV) 보다 Ce(III)가 안정해 지므로, 온도증가에 따라 Ce-페로브스카이트의 화학조성은 Ce(III)의 고용함량이 증가하여 점차 로파라이트($Ce_{0.66}TiO_3$) 쪽으로 이동되는 경향을 보였다(Fig. 6).

Ce-파이로클로어의 최적 생성조건인 소결온도 1300°C 및 산소분위기에서, 단일상의 Ce-파이로클로어($CaCeTi_2O_7$)가 생성되지 않았으며, EDS에 의한 정량분석 결과, 비화학양론적 조성인 $Ca_{1+x}Ce_{1-x}Ti_{2-y}O_{7-x-2y}$ (x=0.03~0.05, y=0.02~0.04)을 나타내고 있다. 즉, Ti 및 Ce에 비해, Ca가 초과됨으로써 결과적으로 Ce-페로브스카이트와 세리아나이트가 공존하게 된 것이다(Fig. 1). 또한 공기 중에서, 1300°C로 소결시킨 경우, 산소분위기에서의 시료보다 Ce-페로브스카이트의 함량이 높은데, 이는 Ce의 산화도와 관련이 있다. 즉 Ce-파이로클로어의 생성을 위하여는 4가의 Ce이 요구되지만, 공기 중에서는 일부 Ce이 3가 상태로 환원된데 그 원인이 있는 것으로 사료된다.

파이로클로어 결정구조를 갖는 Ti계 매트릭스는 비화학양론적 조성을 보이며 이러한 결과로 브래너라이트(brannerite) 구조를 가진 상, 예를 들어, UTi_2O_6 또는$(U, Pu)Ti_2O_6$ 등이 부수적인 상으로 흔히 존재한

다(Ringwood, 1985; Vance *et al.*, 1986; Ebbinghaus *et al.*, 1998; Luo *et al.*, 1998; Yudintsev *et al.*, 1999). 그러나 본 연구에서 수행된 Ce-파이로클로어에 대한 합성실험에서는 이러한 브래너라이트 구조를 가진 상이 존재하지 않았다. 이는 Ce-브래너라이트($CeTi_2O_6$; Fig. 6a)가 1000°C 이상에서 불안정하기 때문이며(Shabalin, 1984), 본 실험의 온도범위에서는 Ce-브래너라이트 대신에, Ce-페로브스카이트, 금홍석과 세리아나이트가 공존되는 것으로 판단된다.

5. 결 론

고준위 핵폐기물의 고정화를 위한 유망한 매트릭스인 Ce-파이로클로어($CaCeTi_2O_7$)를 합성하였으며 XRD, SEM 및 EDS를 사용하여 결정화학적 특성을 연구한 결과는 다음과 같다.

Ce-파이로클로어는 합성조건은 1300°C, 산화분위기에서 소결하는 것이 가장 적합하였으며, 이때, 소량의 Ce-페로브스카이트 및 세리아나이트 등이 공존하였다. Ce(IV)-파이로클로어의 화학조성은 $Ca_{1+x}Ce_{1-x}Ti_{2-y}O_{7-x-2y}$ (x=0.03~0.05, y=0.02~0.04)으로써 비화학양론적인 특성을 지니며, 1400°C 이상에서 점차적으로 비조화분해되어, 1500°C 이상에서는 Ce(III)-페로브스카이트로 전이되었다.

Ce-페로브스카이트는 1000~1500°C 온도범위에서 안정상이었고 로파라이트와 고용체를 형성하고 있다. 특히 1400°C 이상에서는 소결온도가 증가함에 따라, 점차 Ce(III)의 고용함량이 증가하면서 1500°C에서 Ce_2O_3의 함량이 최고 11 mol %를 나타내었다.

소결작업에 의한 Ce-파이로클로어의 최적 생성조건 및 특성 규명은 Pu 등 악티나이드 계열의 원소들에 대한 고용능력의 가능성과 더불어, 단순한 소결작업에 의해 합성되므로, 합성의 용이성 및 경제성을 확보할 수 있다는 장점을 가지고 있다.

참고문헌

Ebbinghaus, B.B., Van Konenburg, R.A., Vance, E.R., Jostsons, A., Anthony, R.G., Philip, C.V. and Wronkiewicz, D.J. (1995) Status of Plutonium Ceramic Immobilization Processes and Immobilization Forms, Report No. CONF-951259. Proceedings: Plutonium stabilization & immobilization workshop, Final Proceedings. Dec. 12-14, Washington, D.C. Sponsored by the U.S. Department of Energy, Washington, D.C. (U.S.A). Pages: 10. Size: 449 Kb.

Ebbinghaus, B.B., VanKonenburg, R.A., Ryerson, F.J., Vance, E.R., Stewart, M.W.A., Jostsons, A., Allender, J.S., Rankin, T. and Congdon, J. (1998) Ceramic formulation for the immobilization of plutonium. In: Proceedings of the International Conference HLW, LLW, Mixed Waste Management and Environmental Restoration Working Towards a Cleaner Environment, Tuscon, AZ, CD-Rom version, Rep. N65-04.

Luo, S., Zhu, X. and Tang, B. (1998) Actinides containment by using zirconolite-rich Synroc. In: Proceedings of International Meeting on Nuclear and Hazardous Waste Management (Spectrum 98), American Nuclear Society, La Grange Park, IL, p. 829-833.

Ringwood, A.E. (1985) Disposal of high-level nuclear waste: a geological perspective. Mineralogical Magazine, v. 49, Pt. 2, p. 159-176.

Ringwood, A.E., Kesson, S.E., Reeve, K.D., Levins, D.M. and Ramm, E.J. (1988) Synroc; Radioactive Waste Forms for the Future, Edited by Lutze, W. and Ewing, R.C., Elsevier, North-Holland, Amsterdam, Netherlands, p. 233-334.

Shabalin, B.G. (1984) Study of synthesis conditions and some properties of thorutite and its cerium analog. In: Petrology, Mineralogy and Ore Deposits Formation within the Ukranian shield. Kiev, Naukova Dumka Publ., p. 13-17 (in Russian).

Sobolev, I.A., Stefanovsky, S.V. and Lifanov, F.A. (1995) Synthetic melted rock-type wasteforms. In: Scientific Basis for Nuclear Waste management-XVIII. MRS Symposia Proceedings, 353, Pt. 2, p. 833-838.

Vance E.R., Urquhart, S., Anderson, D. and George, I.M. (1986) Immobilization of uranium rich high-level nuclear waste. In: Advances in Ceramics. Nuclear Waste Management, American Ceramic Society, v. 20, p. 249-258.

Wang, S.X., Begg, B.D., Wang, L.M., Ewing, R.C., Weber, W.J. and Govindan Kutty, K.V. (1999) Radiation stability of gadolinium zirconate A waste form for plutonium disposition. J. Mat. Res., v. 14, p. 4470-4473.

Yudintsev, S.V., Stefanovsky, S.V. and Ewing, R.C. (1999) Structural and compositional relationships in titanate-composed ceramics for actinide-bearing waste immobilization. In: the Proceedings of the International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation (ICEM 99), American Society of Mechanical Engineers, NY, CD-Rom version, file 373.pdf.

2002년 2월 7일 원고접수, 2002년 4월 26일 게재승인.