

# DUPIC scrap waste의 석탄회유리고화체에 대한 내침출성 분석

박장진 · 김종호 · 전관식 · 신진명 · 조영현  
한국원자력연구소

## 요 약

석탄화력발전소의 부산물인 석탄회를 이용한 DUPIC dirty scrap waste의 유리고화체에 대한 내침출성을 분석하였다. Fly ash,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{NaNO}_3$ ,  $\text{B}_2\text{O}_3$  에 DUPIC 핵연료 제조공정으로 부터 발생하는 모의 dirty scrap waste를 15 wt% ~ 30 wt% 혼합하여, 1150°C 에서 3시간 용융시킨 후 서서히 냉각시켜 얻은 유리고화체의 침출성을 온도, 침출액의 종류, 폐기물의 함량 등에 따라 평가하였다. 침출실험결과 석탄회유리고화체는 양호한 내침출성을 보였다. 석탄회유리고화체의 침출율은 합성 지하수, 합성해수, 증류수의 순으로 감소하였으며, 폐기물함량의 증가에 따라 증가하였다.

### 1. 서론

고준위방사성폐기물의 고화체로서 제안된 것으로는 유리, 세라믹, 합성암(SYNROC, Synthetic Rock), 강화 콘크리트 등을 들 수 있다. 그러나 기술적으로 그 유용성이 입증되어 상용화된 것은 유리화이며 이 중에서도 붕규산유리가 적합한 것으로 평가되고 있다<sup>1)</sup>

석탄화력발전소 폐기물인 석탄회는 붕규산유리의 기본구성물질인 실리카 및 알루미늄 성분을 평균 85%이상 함유하고 있으며, 이중 알루미늄은 고준위방사성폐기물 유리고화체의 제조시 내침출성을 향상<sup>2)</sup>시키는 좋은 특성을 가지고 있으므로 이의 유효이용은 폐기물의 재활용 및 자원화 측면에서 상당히 중요성을 지닌다.

석탄회의 활용방안의 하나로서 전 등<sup>3)</sup>은 DUPIC 핵연료 제조공정으로 부터 발생하는 dirty scrap waste의 붕규산유리고화체 제조원료 물질로 석탄회의 이용가능성에 대한 연구를 수행한 바 있다. 본 연구에서는 폐기물함량, 침출온도, 침출액의 종류 등이 dirty

scrap waste 붕규산유리고화체의 내침출성에 미치는 영향에 대하여 분석하였다.

## 2. 시험재료

### 2.1 고화 재료

본 실험에 사용된 석탄회는 보령화력발전소에서 채취한 것을 사용하였으며 이의 화학 조성은 전 등<sup>3)</sup>의 연구결과에 나타나 있다.

### 2.2 모의 dirty scrap waste

실험에 사용된 모의 scrap waste는 <sup>235</sup>U의 초기농축도 3.5%, 연소도 35,000 MWD/MTU, 냉각기간 10년이 경과된 가압경수로 사용후핵연료의 조성을 ORIGEN-II code로 계산하여 제조하였다.

## 3. 실험방법

### 3.1 침출시편제조

모의 고준위 붕규산유리고화체는 유리고화체의 형성이 가능한 모유리의 조성을 선택하여 모의 dirty scrap waste를 20 wt% 혼합한 후 alumina crucible에 충전시켜 1150℃의 전기로에서 3시간 용융시킨 후 두께 1-2mm로 평판화하여 서서히 냉각시킨 다음 low speed diamond saw로 시편을 절단, 가공, 연마(polishing) 하여 제조하였다.

### 3.2 고화체의 Soxhlet 침출실험

침출실험용 시편을 스테인레스선으로 묶어 2일동안 계속적으로 200ml의 침출액에 노출시켰다. 시료 분석은 Atomic Absorption Spectrometer 및 ICP-Emission Spectroscopy를 이용하여 침출액중의 U, Cs, Na, B, Si, Al 등의 농도를 분석하였고, 다음 식<sup>4)</sup>에 의해 침출율을 계산하였다.

$$L_i = \frac{\sum A_i}{A_o} \times \frac{W}{S \times t}$$

$L_i$  : 침출율,  $g/cm^2 \cdot day$

$A_o$  : 시편중 원소  $i$ 의 초기함량,  $g$

$\sum A_i$  : 원소  $i$ 의 침출량,  $g$

$W$  : 시편초기무게,  $g$

$S$  : 시편표면적,  $cm^2$

$t$  : 침출시간,  $day$

폐기물의 함량에 따른 고화체의 침출율을 알아보기 위하여 92℃에서 폐기물의 함량 15, 20, 25, 30 wt %인 고화체의 침출실험을 수행하였으며 침출액으로 증류수를 사용하였다. 또 폐기물함량이 20%인 유리고화체에 대하여 온도변화가 침출율에 미치는 영향을 알

아보기 위하여 64°C, 72°C, 82°C, 92°C에서 침출실험을 수행하였으며, 침출액으로는 역시 증류수를 사용하였다.

침출액의 종류에 따른 침출율의 변화를 살펴보기 위하여 침출액으로서 증류수, 합성지하수, 합성해수를 이용하여 침출실험을 수행하였다. 침출액으로 사용한 합성지하수, 합성해수의 조성은 각각 표 1, 표 2와 같으며, 사용된 고화체 시편의 폐기물함량은 20wt%이었다.

표 1. 합성지하수 조성

compound	mol
NaCl	0.08287
KCl	0.0000362
MgCl <sub>2</sub>	0.000254
CaCl <sub>2</sub>	0.042694
Sr(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	0.000277
SiO <sub>2</sub>	0.000180
FeCl <sub>2</sub>	0.0000101
CaSO <sub>4</sub>	0.0110
NaHCO <sub>3</sub>	0.00113

표 2. 합성해수 조성

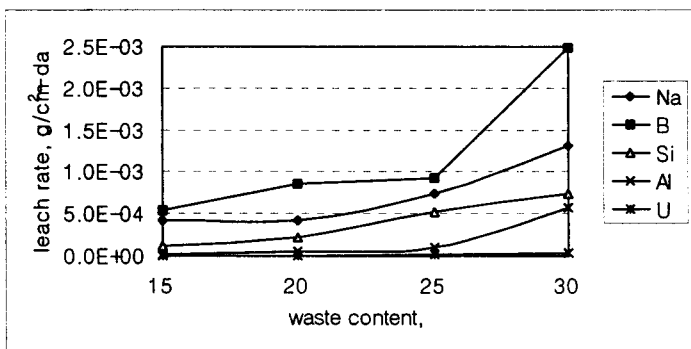
compound	mol
NaCl	0.402
MgCl <sub>2</sub>	0.502
Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	0.027
CaCl <sub>2</sub>	0.010
KCl	0.009
NaHCO <sub>3</sub>	0.002
KBr	0.001

#### 4. 결과 및 고찰

##### 4.1 폐기물의 함량에 따른 침출율변화

Dirty scrap waste glass의 폐기물함량에 따른 원소의 침출율변화를 그림 1에 나타내었다. 고화체의 침출성은 폐기물함량의 증가에 따라 증가하는 경향을 보여주고 있는데, 이는 폐기물함량의 증가에 수반되는 고화체 matrix의 공극률(porosity)이 증가되고 그 결과 침출에 관여하는 고화체와 침출액의 접촉면적이 증가하기 때문이라고 생각된다.<sup>5)</sup> 폐기물 함량 25% 이상에서 B, Na, Al 등 원소의 침출율의 가파른 증가를 보이므로 내침출성 측면에서 볼 때 폐기물함량의 상한값은 25% 정도로 생각된다.

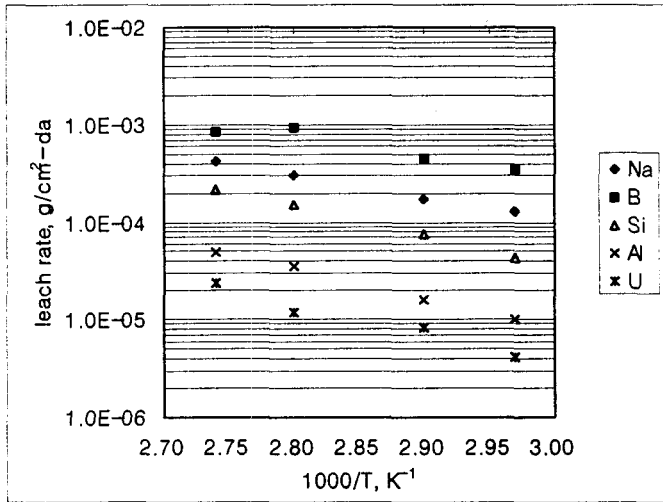
그림 1. 폐기물함량에 따른 침출율 변화



#### 4.2 침출온도에 따른 침출율변화

침출온도와 원소의 침출율과의 관계를 그림 2에 나타내었다. 원소의 침출율은 침출온도가 높을수록 증가하는 경향을 보였으며, Arrhenius식을 잘 만족하고 있음을 알수 있다. 원소의 무게손실을 기준으로 한 경우 온도범위 64 ~ 92°C 범위내에서 약 2 ~ 5배 정도의 침출율 증가를 보여주고 있으며, Arrhenius식으로부터 구한 원소별 활성화에너지는 약 40 ~ 80 KJ/mole 의 범위로 전형적인 붕규산유리고화체의 침출시의 값을 나타내고 있다<sup>6)</sup>.

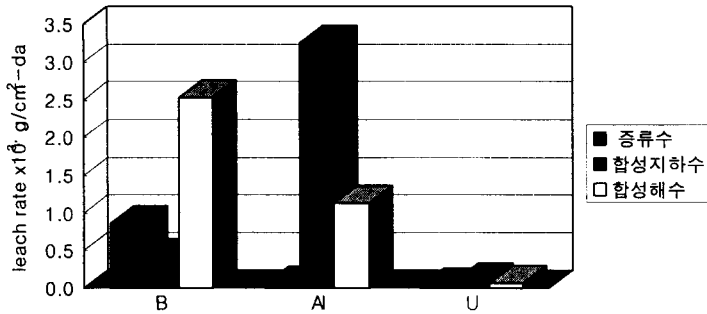
그림 2. 온도에 따른 침출율 변화



#### 4.3 침출액에 따른 침출율변화

침출액으로 증류수, 합성지하수, 합성해수를 사용한 경우 각 원소의 침출율을 그림 3에 나타내었다. 침출율은 증류수에서 가장 낮았으며, 합성해수, 합성지하수의 순으로 증가하였다. 다만, B의 경우 합성지하수에서의 침출율이 증류수나 합성해수에서의 침출율보다 낮은 값을 보여주고 있는데, 이는 침출액 중의 Si농도가 높을수록 B의 침출속도가 급격히 감소한다는 Pederson<sup>4)</sup> 등의 연구결과와 일치한다. 한편, 합성해수 중에는 화학적 침식을 일으키는 황산나트륨이 소량 함유되어 있으나, 유리고화체의 침출율에는 큰 영향을 미치지 않는 것으로 생각된다.

그림 3. 침출액에 따른 침출율 변화



### 5. 결론

폐기물함량 25% 이상에서 침출율의 급격한 증가를 보이므로 내침출성 측면에서 볼 때 폐기물함량 25%가 상한값으로 생각된다. 석탄회유리고화체의 침출율은 폐기물함량 15~25% 범위에서 Na:  $4.20 \times 10^{-4}$  -  $7.45 \times 10^{-4}$ , B:  $5.34 \times 10^{-4}$  -  $9.20 \times 10^{-4}$ , Al:  $1.33 \times 10^{-5}$  -  $9.85 \times 10^{-5}$ , Si:  $1.17 \times 10^{-4}$  -  $5.17 \times 10^{-4}$ , U:  $5.12 \times 10^{-6}$  -  $9.40 \times 10^{-6}$  g/cm<sup>2</sup>-day 범위로 양호한 내침출성을 나타내었다. 한편, 침출율은 원소의 무게손실을 기준으로 할 경우 온도범위 64 ~ 92°C 범위내에서 약 2 ~ 5배 정도 증가하였으며, 합성지하수, 합성해수, 증류수의 순으로 감소하였다.

### 참고문헌

1. P. J. Hayward, et al., A Review and Discussion of Candidate Ceramic for Immobilization of High-Level Fuel Processing Wastes, AECL-6815, 1982
2. L. A. Chick, et al., Effects of Composition on Properties in an 11-Component Nuclear Waste Glass System, PNL-3118, 1981
3. 전관식 등, 연계핵연료주기 방사성폐기물관리기술개발, KAERI/RR-1469/94, 한국원자력 연구소, 1995
4. IAEA, Chemical Durability and Related Properties of Solidified High-level Waste Forms, IAEA-TR-257, 1985
5. 江村 悟 등, 방사성폐기물시멘트고화체의 안전평가, JAERI-M 5779, 1974
6. W. Lutze, Radioactive Waste Forms for the Future, North Holland, 1988