

ISO 침출시험법을 이용한 모의 방사성폐기물 유리고화체의 침출특성 평가

김지연, 김천우, 박종길, 황대원
 한국수력원자력(주) 원자력환경기술원
 대전광역시 유성구 덕진동 150번지
 cheonkim@khnp.co.kr

수많은 재료 가운데서도 유리가 방사성폐기물의 처리 매질로 선정된 가장 큰 이유는 방사성물질을 지하수 등을 통하여 환경에 누출시키지 않고 장기간 자체 보존할 수 있는 침출에 대한 저항력이 상대적으로 뛰어나기 때문이다. 원자력환경기술원은 원자력발전소에서 발생하는 저방사성(RWB) 및 고방사성(CVCS) 폐수지, zeolite 및 가연성잡고체(DAW)를 유리화하기 위하여 두 가지 후보유리를 개발하였다. 첫 번째 후보유리인 AG8W1은 RWB 폐수지와 제올라이트, DAW가 일정하게 혼합된 폐기물 유리화용 유리이고 두 번째 후보유리인 AG8W2는 RWB와 CVCS 폐수지, 제올라이트 및 DAW가 일정한 비율로 혼합된 폐기물 유리화용 유리이다. 두 후보유리의 성분 및 자체개발 컴퓨터 코드(GlassForm 1.1)로 계산한 주요물성치들을 표 1에 나타내었다. 개발한 두 종류 후보유리의 화학적 특성 평가를 위해서 국제적으로 인증한 침출시험법인 ISO (International Organization for Standardization)를 수행하였다.

표 1. 두 후보유리 조성 및 전산코드로 계산한 주요 물성치

	후보유리	
	AG8W1	AG8W2
SiO ₂	43.14	41.14
알카리 금속	20.44	24.56
B ₂ O ₃	9.97	10.71
Al ₂ O ₃	12.3	12.76
알카리 토금속	6.94	2.33
전이금속	5.57	6.71
기타	1.64	1.79
밀도 (g/cm ³)	2.67	2.65
점도 (poise)†	67	22
전기 전도도 (S/cm)†	0.31	0.66
액상온도(°C)	758	721
7-day PCT(g/m ²)	Si, B, Na, Li : < 2	
미네랄 loading(wt%)	40	20
감용비	84	33

† : 1,150°C에서의 값임

두 후보유리의 침출시험을 실험실적으로 평가하기 위해서 화학약품(raw chemical)을 사용하여 약 600g의 유리 배치(glass batch)를 만들었다. 각 후보유리별 조성에 맞게 조제한 화학약품 배치를 골고루 섞은 후 점토 도가니(clay crucible)에 옮겨 담아 MoSi₂ 발열체 전기로를 이용하여 1,150°C로 가열하고 1,150°C에서 45분간 유지하였다가 꺼내어 석영봉(quartz rod)으로 용융유리를 균질하게 혼합하였고 다시 전기로에 넣어 1,150°C에서 15분 동안 용융한 다음 흑연몰드에 부어 냉각하였다. AG8W1과 AG8W2 후보유리에 대한 용출수 부피 대 봉 형태로 만든 시료 표면적 비인 0.1~0.2m에 해당되는 탈이온 용출수를 시료와 함께 PTFE 용기에 넣고 90°C의 온도에서 시험을 수행하였다. 침출수는 1, 3, 7일, 이후는 주 1회, 6주 이후에는 4주마다 1회 교환하였으며, 후보유리로부터 침출되어 나온 주요원소의 침출률과 누적침출분율(Cumulative Fraction Leached, CFL)

을 평가하였으며 침출액의 pH 변화도 함께 측정하였다. 후보유리의 침출수내 주요성분들의 농도 분석을 위하여 ICP-AES/MS를 이용하였다.

ISO 시험은 603일 동안 수행하였으며 침출액내 pH 변화와 주요원소들의 침출결과를 요약하면 다음과 같다. 시험 초기인 약 90일까지는 용출액이 유리의 변형체와 이온교환반응을 일으켜 알칼리 수산화물을 형성하여 침출액의 pH를 증가시켰으며 pH가 증가하면서 용해속도가 증가하게 되었다. 그 다음 단계에서는 침출된 유리 내부나 표면에 난용성 화합물의 침전에 의하여 유리 침출을 지연시키는 층이 형성되므로 침출률은 감소하게 되었고 pH도 지속적으로 감소하는 경향을 나타내었다. 그림 1에 주요원소(B, Na, & Si)에 대한 누적침출분율을 나타내었다. 분석결과 두 후보유리 모두 B, Na의 누적침출분율은 매우 완만한 기울기를 유지하며 상승하는 곡선이나 유리 구조의 주요골격 구성원소인 Si의 경우는 포화되는 것을 보여줌을 알 수 있었다. 분석결과 침출액 중에 silicic acid의 농도가 감소하지만 다른 원소들의 경우 지속적인 확산은 계속해서 진행되는 것으로 평가되었다.

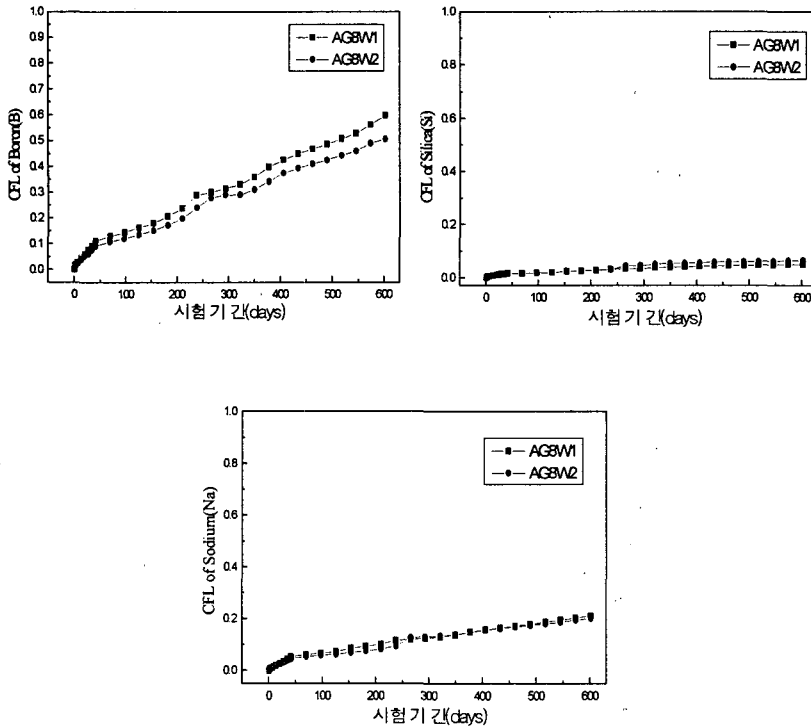


그림 1. 두 후보유리의 주요원소에 대한 누적침출분율

방사성 원소 중 대표적인 두 가지 원소인 세슘(Cs)과 코발트(Co)에 대한 침출특성을 살펴보기 위하여 비방사성 모의 핵종(AG8W1/AG8W2= Cs₂O 0.1/0.1wt%, CoO 0.31/0.42wt%)을 spiking 하여 시험 수행한 결과 침출액 중에서 세슘의 농도는 ICP-MS 검출 하한치(0.01ppb) 이하로 나타나 평가가 불가능 하였으며 코발트의 경우 두 후보유리에서 간헐적으로 침출되었으나 누적침출분율은 주요원소들에 비해 상대적으로 미량(0.002% 이하) 침출된 것으로 나타났다.