

## 겔화반응을 이용한 방사성 염폐기물의 안정화/고형화

박환서, 김인태, 김환영, 김준형

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

[hspark72@kaeri.re.kr](mailto:hspark72@kaeri.re.kr)

사용후 핵연료 내 우라늄 및 초우란 원소 회수공정에서 발생하는 금속염화물로 이루어진 폐용융염은 직접적인 유리화나 세라믹고화가 대단히 어려우며 이에 대한 새로운 고화방법의 개발을 필요로 한다. 미국 ANL에서 제안된 제올라이트를 이용한 폐용융염의 처리방법은 현재까지 적용 가능성이 가장 높은 방법으로 고려되고 있다. 높은 처분 안정성을 가지는 반면에 낮은 waste loading과 상대적으로 고온에서 전처리 과정이 진행되므로 인해 공정이 상대적으로 복잡한 단점을 가진다. 본 연구팀은 공정단순성과 처리효율성을 높이는 방법으로 GRSS (Gel-Route Stabilization/Solidification)법을 제안하였다. 이 방법은 sodium silicate를 겔화물질(gelling agent)로, 인산을 겔화촉매/안정화제(catalyst/stabilizer)로, aluminum nitrate 또는 chloride를 특성향상제(promotor)로 이루어진 겔화물질계를 이용하여, 염화물 용액에 부가하여 겔화 및 건조시킨후, 선택된 유리분말과 혼합하여 열처리함으로써, 열적, 수화학적으로 안정한 고화체를 제조하는 공정으로 이루어져 있다. 본 연구에서는, 임의의 조성을 가지는 붕규산 유리조성 및 규산 알루미늄 유리조성에 대해, 혼합비와 처리량을 변화시켜 얻은 monolithic waste form의 내구성을 PCT법으로 평가하였다.

90 wt%의 LiCl은 주로  $\text{Li}_3\text{PO}_4$ 로 전환되었으며, 유리조성에 의존하여  $10^{-2}\sim 10^{-1}\text{g/m}^2\cdot\text{day}$ 의 침출속도를 나타내었다. Cs 및 Sr은 주로 aluminosilicate 화합물로 존재하며, 유리조성에 큰 영향을 받지 않으며 Cs는  $10^{-3}\sim 10^{-2}\text{g/m}^2\cdot\text{day}$ 를, Sr은  $10^{-4}\sim 10^{-3}\text{g/m}^2\cdot\text{day}$ 의 침출속도를 보였다. 유리의 종류 및 조성에 대한 의존성은 각 원소종이 포함된 결정상과 유리와의 compatibility와 상대적인 존재량에 따라 영향을 받는 것으로 유추하였다. 즉, 붕규산 유리매질의 경우, 존재량이 많은  $\text{Li}_3\text{PO}_4$ 는 유리매질과 상용성이 큰 반면에, 규산알루미늄화합물로 존재하는 Cs나 Sr은 사용된 유리매질의 양에 의존하여 차폐되어 지는 것으로 유추되었다. 16g의 폐용융염 처리에 84g의 첨가물(유리매질과 겔화물질)을 이용하여 Cs의 휘발을 제어하며 내구성이 높은 고화체를 만들 수 있었다. 이는 폐용융염 8g의 처리에 약 92g의 첨가물(제올라이트와 유리매질)을 필요로 하는 ANL의 제올라이트법에 비해 약 2배이상의 처리효율을 가지는 것이다. Cs 및 Sr의 내침출성은 ANL에 상용하거나 그보다 높은 값을 나타내었다. 이상의 결과로부터, 본 연구팀에서 제안된 폐용융염의 안정화/고형화를 위한 GRSS법은 매우 간단한 공정을 통하여 금속염화물이 가지는 휘발특성 및 고화매질에 대한 제한성을 제거함으로써, 보다 높은 처리효율과 높은 안정성을 가질 수 있음을 확인하였으며, 향후, 심도 있는 검증연구를 통하여, 미국의 ANL에서 제안된 제올라이트법에 대한 대안으로 고려될 수 있을 것으로 판단된다.