염폐기물 고화체 제조에 있어 유리첨가 유무에 따른 결정상 변화

김정국, 이재희, 김환영, 김인태
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지
jungkim@kaeri.re.kr

한국원자력연구소에서 개발되고 있는 사용후 핵연료 건식처리공정의 하나인 전해환원단계에서 발생된 폐LiCl-Li_2O 용융염을 안정화하여 처분장에 수용 가능한 고화체로 만드는 기술이 연구 중이다. 염폐기물은 Cs, Sr, Ba 및 Y과 같은 고방열성 핵분열 생성물을 다량 함유하는 염화물계로 고준위폐기물 고화체 제조 시에 사용되는 유리에 거의 용해되지 않기 때문에, 유리화하기 전에 제올라이트 4A에 내포시키는 처리를 거친다. 용융염폐기물과 제올라이트를 혼합하면 제올라이트의 세공내로 방사성핵종과 염(chloride) 성분이 들어가게 된다. 이렇게 제조된 염내포제올라이트(salt-loaded zeolite; SLZ)를 고온에서 열처리하면 세공의 입구가 훨씬 더 작은 Na-계 소달라이트로 결정전이되어, 결국 핵종은 세공 내에 갇히게 되고 염은 소달라이트의 결정구조의 일부가 방식으로 핵종이 고정된 매우 안정한 고화체가 얻어진다. 이러한 염폐기물 고화체 제조기술을 개발하려는 지난 몇 년간의 연구를 통해, LiCl 염폐기물을 세라믹 고화체로 만드는 적정 조업조건을 구하였다. 즉, LiCl 염폐기물 / 제올라이트 4A의 혼합비가 약 0.1 - 0.3이 되도록 V-형 블랜더에서 650 ℃에서 혼합시켜 SLZ를 만들면, 이들의 결정상은 Li-A나 NaCl이 주종을 이루고 Li-계 소달라이트가 약간 생성된 상태가 된다. 이를 915 °C의 전기로에서 열처리시키면 Na-계 소달라이트가 주종으로 결정전이가 일어나는 것이다. 이 과정에서 미국 ANL은 SLZ에 Borosil;icate계 Glass frit를 혼합하여 열처리를 통한 결정전이과정과 고화(consolidation)를 동시에 수행한다. Glass frit를 첨가하지 않고 고온 열처리과정을 진행시키면 Na-계 소달라이트로의 결정전이가 일어나는 적정 혼합범위가 약간 달랐다. 이러한 이유는 Glass frit가 첨가됨으로 열전달이 느리게 일어남으로 Cl-이온이 Na-계 소달라이트의 격자로 원활히 들어가지 못하기 때문으로 보인다.