

## 희토류 산화물의 고화 연구

안병길, 박환서, 김환영, 김인태  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지  
[bgan@kaeri.re.kr](mailto:bgan@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

건식 전해정련 공정에서 발생하는 폐 용융염에 존재하는 핵분열 물질들을 분리하여 안정된 고화체를 제조 및 처분함으로써 용융염의 재활용이 가능하고 폐기물 발생량을 크게 줄일 수 있다. 기존의 유리 고화체 제조 방법은 습식 공정에서 나오는 폐액을 대상으로 개발된 것으로, 전처리 공정을 거친 폐기물과 유리 frit을 유도가열로 혹은 직접 가열로(Joule-Heated Ceramic melter)에서 용융시킨 후 용융된 유리를 고화체 용기에 주입하여 유리 고화체를 제조한다. 이들 공정은 원격보수, 용융 유리와 접촉하는 내화벽돌의 부식, 전극 재료 내식성, 구조의 복잡성 등 고려되어야 할 사항이 많다. 본 연구에서는 이러한 문제점 들을 해결하기 위해서 저온(~ 950°C) 소결에 의한 in-drum 고화체 제조를 위해서 희토류 산화물, 온도 및 조성 에 따른 britholite계 세라믹 합성 특성, glass frit 에 따른 소결 특성 등을 분석하였다.

### 2. 실험 및 결과

프랑스에서 유리고화체 제조에 사용되는 R7T7 유리에 20 wt% Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의를 첨가하여 950°C에서 5시간 동안 소결 후 얻어진 고화체에 대한 SEM 분석 결과(Fig. 1 참조)를 보면 glass phase 와 britholite 계 세라믹인 Ca<sub>2</sub>Nd<sub>8</sub>(SiO<sub>4</sub>)<sub>6</sub>O<sub>2</sub> 가 불균일하게 형성 되어 있음을 알 수 있다. 그리고 반응 생성물은 R7T7 glass의 Si 성분과 반응하여 형성된 것으로 glass matrix로 사용된 R7T7 유리 매질의 성능을 저하시킬 수 있다. 동일한 조건에서 sodium silicate에 의해 제조된 고화체의 SEM 분석 결과 R7T7 고화체와는 다르게 반응 생성물이 균일하게 형성되었다. 이러한 현상은 유리매질의 용융온도, 반응성 등에 의한 현상으로 판단된다. 이러한 결과로 부터 희토류 산화물을 안정한 세라믹 물질로 만드는 전처리 공정을 거친 후 유리 매질로 고화하는 glass powder 소결 방법 을 도출하였다. 희토류 산화물의 세라믹 형성 특성을 보기 위하여 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 55 wt%와 sodium silicate 45 wt% 혼합물에 대한 소결온도에 따른 반응 생성물의 특성을 XRD 로 분석하였다(Fig. 2).

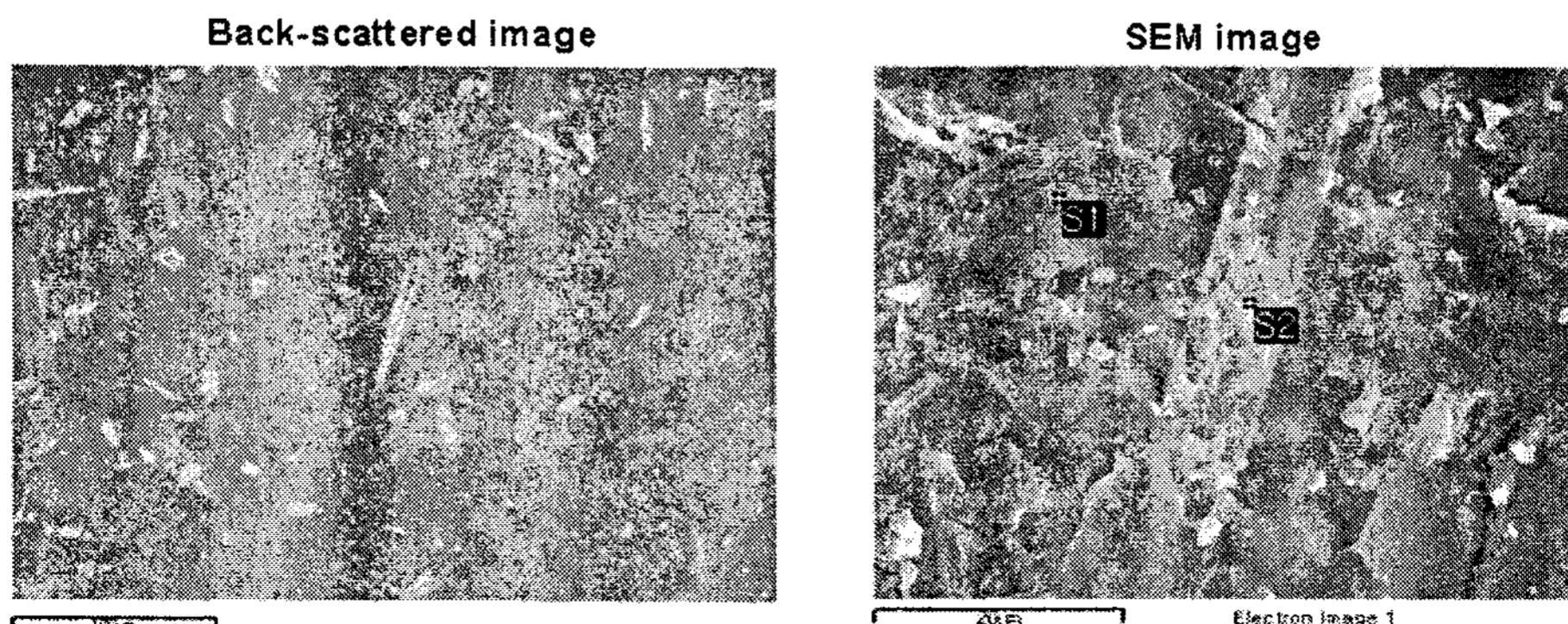


Fig. 1. SEM image of the fracture surface of a R7T7 glass-Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(20wt%)-waste form.

XRD 분석 결과를 보면 600~700 °C 영역에서는  $\text{La}_2\text{O}_3$  형태로 존재하다가 800°C 이상의 소결온도에서는 안정한 britholite 계 세라믹인  $\text{NaLa}_9(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ 가 형성됨을 알 수 있다. 이러한 전처리 세라믹 소결체를 R7T7 glass로 900°C에서 2시간 소결한 고화체의 XRD 분석 결과를  $\text{La}_2\text{O}_3$  함량에 따라 그림 3에 나타내었다. 이 그림을 보면  $\text{La}_2\text{O}_3$  함량이 31 ~ 45.5 wt%로 증가하여도  $\text{La}_2\text{O}_3$  peak가 없는 britholite계 세라믹 고화체를 형성함을 알 수 있다.

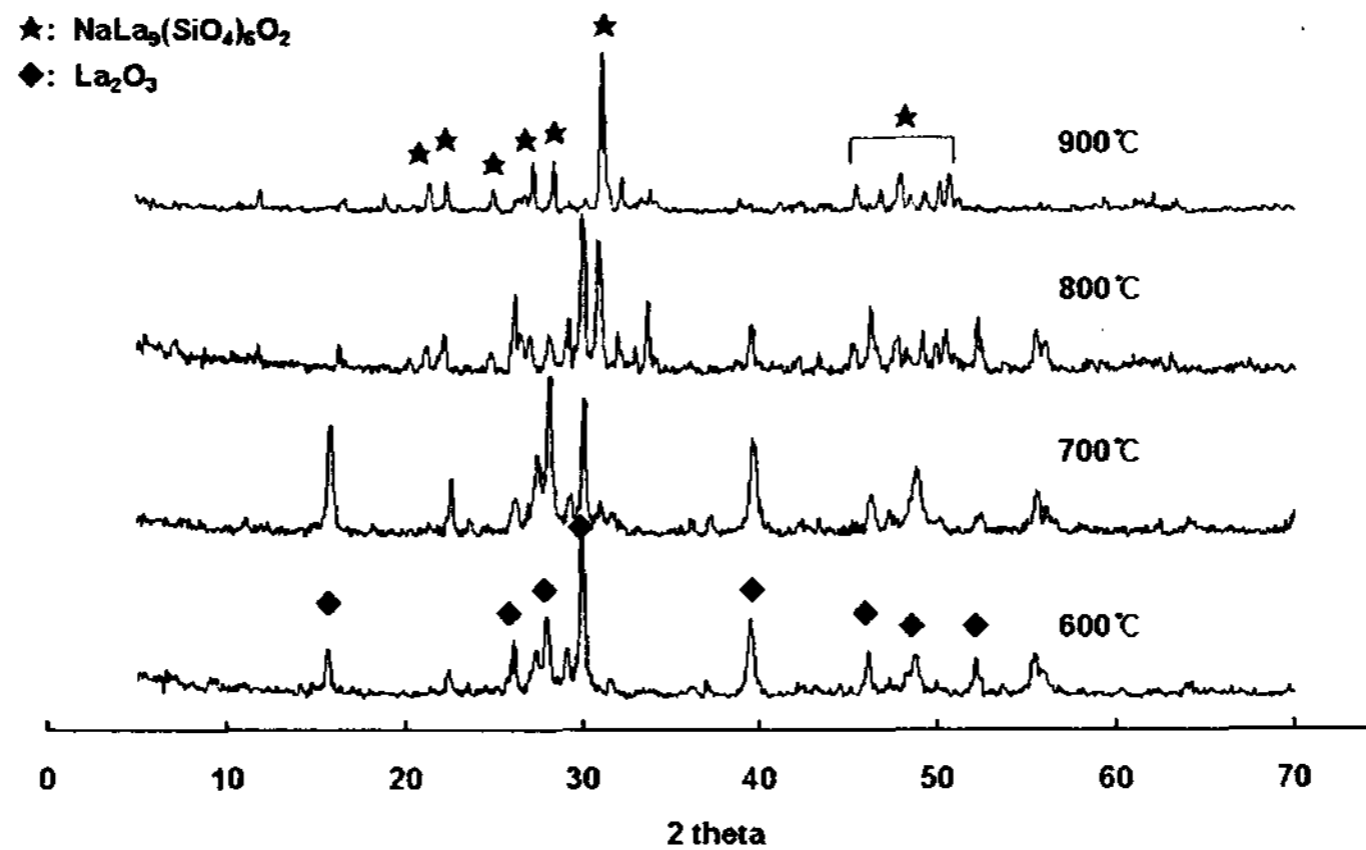


Fig. 2. XRD patterns of sodium silicate- $\text{La}_2\text{O}_3$ (550wt%)-waste form according to sintering temperature.

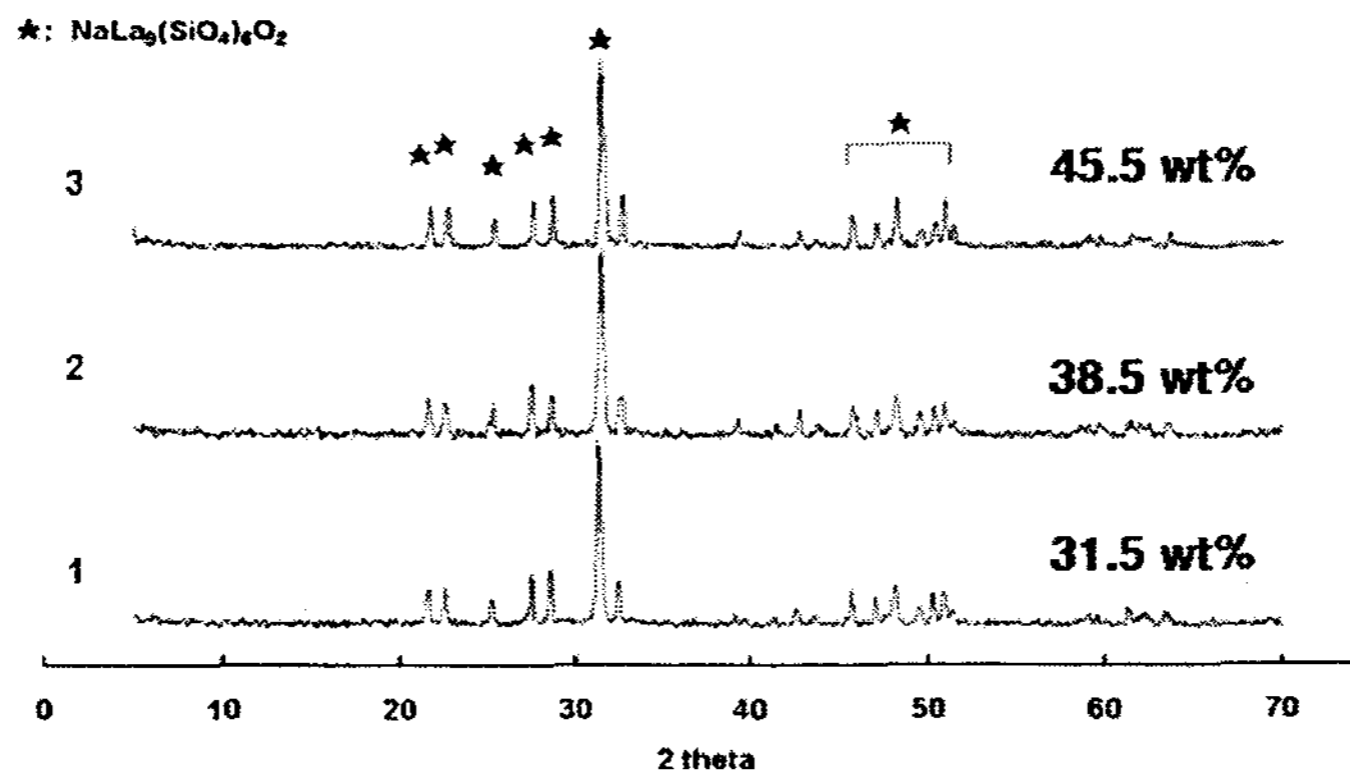


Fig. 3. XRD patterns of R7T7 glass-sintered product(sodium silicate- $\text{La}_2\text{O}_3$ )-waste form according to  $\text{La}_2\text{O}_3$  contents.

### 3. 결론

용융에 의한 고화체 제조에 따른 문제점을 해결하기 위하여 in-drum 고화체 제조에 적합한 저온 소결에 의한 glass powder sintering 방법을 도출하였다. 고화 대상 희토류 산화물을 ~ 800°C에서 sodium silicate와 반응시켜 세라믹을 분말을 제조하고, 이 분말을 유리 고화체 내에 균일하게 분산시켜 안정된 고화체를 제조할 수 있었다.  $\text{La}_2\text{O}_3$ 의 경우 45.5 wt%가 함유된 R7T7 고화체의 경우  $\text{La}_2\text{O}_3$  peak가 없는 britholite계 세라믹 고화체의 제조가 가능하였다.