방사성 유리고화체의 pH 및 온도에 대한 침출특성

김인태, 박환서, 조용준, 김천우*, 황태원*
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
*한국수력원자력(주), 대전광역시 유성구 장동 25-1
nitkim@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력 발전시설로부터 배출되는 여러 가지 방사성 폐기물들은 자연환경에 위해성을 차단하기 위해 고립처분되어져야 한다. 이러한 점에서, 방사성 핵종을 물리화학적으로 안정한 매질내에 고정화시키는 유리고화기술은 부피감용 및 높은 내구성을 가진다는 측면에서 널리 응용 연구되고 있다. 여러 가지 방사성 폐기물에 대해 유리고화공정등을 통하여 얻어지는 고화체는 최종처분장에서 일어날 수 있는 예측 또는 비예측 환경에 따른 물리화학적 특성평가가 이루어져야 한다. 본 연구는 원자력 발전소에서 발생되는 저방사성 폐수지, 무기이온교환수지 가연성 잡고체등에 대한 유리고화기술을 적용하기 위해 원자력발전연구원에서 개발된 Base glass인 AG8과 DG2B와 이 유리를 이용하여 대상 폐기물을 유리화시켜 얻은 유리고화체인 AG8W1과 DG2유리에 대한 특성평가 방법의 하나로서, MCC-1P침출시험법을 수행하여 침출온도 및 침출용액의 pH변화에 따른 고화체의 내구성을 평가하고자 하였다.

2. 실험 및 결과

침출시험에 사용되는 유리고화체는 화학시약을 사용하여 개발된 각 종류의 설정된 조성에 맞게 제조하였다. 전기로를 이용하여 고온용융시킨 후 mold에 부은 후 냉각하여 얻어진 유리성형체를 크기 약 1x1x1mm의 크기로 자른후, polishing과정을 통하여 침출표면을 처리하였다. 얻어진 유리고화체 침출시편은 PFA(perfluoroalkoxy) Teflon 용기에 넣고 설정된 pH 5~11의 범위의 완충용액을 이용하여 MCC-1침출시험법에 따라 침출시험을 수행하였다. 침출시험온도는 40℃, 70℃, 및 90℃에서 수행하였으며, 온도에 따라 침출시간은 1일에서 91일로 하였다. 시험종료후 얻어진 침출용액은 ICP-MS 및 ICP-AES를 이용하여 각 성분의 농도를 분석하였다.

얻어진 침출결과는 침출속도에 대한 pH 및 온도의존성을 나타내는 다음식을 이용하여 각 유리고화체의 특성을 평가하고자 하였다.

$$\text{Rate } f = k0 \bullet 10(n \bullet pH) \bullet \exp(-Ea/RT) \text{-----(1)}$$

n은 pH 의존성에 대한 값을 나타내며, Ea는 activation에너지로 온도의존성을 의미하는 값이다. 이식에 적용하기 위해서는 시간에 따른 normalized mass loss로부터, 선형회귀분석을 통하여 침출속도를 구하여야 한다. Table 1과 2는 Si 및 Cs에 대하여 90℃ 및 70℃에 대한 결과를 나타낸 것으로 침출속도는 약 0.01~4g/m^2d로 나타났다. 특히 Cs는 pH 및 온도에 따른 침출거동이 Si와 유사한 특성을 나타내었다. 각각의 유리고화체는 pH에 따라 최소값을 가지는 구간이 존재하며, DG2B 및 DG2는 pH가 약 7~10범위에서 최소값을 가지는 반면에, AG8 및 AG8W1은 pH5~7의 범위에서 최소값을 가지는 것으로 나타났다. 현재 40℃에 대한 침출시험이 진행중에 있으며, 얻어지는 침출결과로부터, 식(1)의 값들을 결정하여 pH 및 온도에 따른 고화체의 내구성에 대한 diagram을 완성할 수 잇을 것이다.

Table 1. Forward rates of Si for each pH and temperature obtained by linear regression

DG2B-90℃		DG2-90℃		AG8-90℃		AG8W1-90℃	
pH	rate(g/m^{2}d)	pH	rate(g/m^{2}d)	pH	rate(g/m^{2}d)	pH	rate(g/m^{2}d)
5.3	0.2828	6.1	0.9046	5.5	0.0960	5.7	0.1748
7.2	0.0811	7.6	0.4771	6.6	0.0470	7.5	0.3072
8.4	0.4052	8.5	0.4569	8.4	0.6907	8.5	0.4148
9.7	0.7686	9.7	0.3258	9.7	1.0070	9.6	2.0174
10.9	1.7783	11.1	1.0926	11.1	2.6666	10.9	3.5720
DG2B-70℃		DG2-70℃		AG8-70℃		AG8W1-70℃	
pH	rate(g/m^{2}d)	pH	rate(g/m^{2}d)	pH	rate(g/m^{2}d)	pH	rate(g/m^{2}d)
4.6	0.1195	5.9	0.5376	4.9	0.0363	4.8	0.1748
6.4	0.0613	7.8	0.4208	6.2	0.0126	5.9	0.0320
8.4	0.0267	8.6	0.3350	8.3	0.0648	8.3	0.1443
10.3	0.5017	9.2	0.2732	10.0	0.7157	9.0	0.3852
11.0	1.4782	11.2	0.6997	10.7	1.3189	10.9	0.8121

Table 2. Forward rates of Cs for each pH and temperature obtained by linear regression

DG2B-90℃		DG2-90℃		AG8-90℃		AG8W1-90℃	
pH	rate(g/m^{2}d)	pH	rate(g/m^{2}d)	pH	rate(g/m^{2}d)	pH	rate(g/m^{2}d)
5.3	0.6066	6.1	2.4657	5.5	3.7175	5.7	1.6633
7.2	0.4732	7.6	1.6648	6.6	0.2918	7.5	0.2530
8.4	0.7180	8.5	0.6128	8.4	0.3895	8.5	0.7421
9.7	0.7816	9.7	0.4034	9.7	0.9014	9.6	1.2436
10.9	1.3843	11.1	2.0381	11.1	3.0652	10.9	1.5435
DG2B-70℃		DG2-70℃		AG8-70℃		AG8W1-70℃	
pH	rate(g/m^{2}d)	pH	rate(g/m^{2}d)	pH	rate(g/m^{2}d)	pH	rate(g/m^{2}d)
4.6	1.8060	5.9	1.6868	4.9	1.5844	4.8	0.7167
6.4	0.4914	7.8	1.1390	6.2	0.6596	5.9	0.4639
8.4	0.0734	8.6	0.9171	8.3	0.0707	8.3	0.1819
10.3	0.4204	9.2	0.6097	10.0	0.9254	9.0	0.6393
11.0	1.0761	11.2	1.4651	10.7	1.6735	10.9	1.5635

3. 결론

원자력 발전소에서 발생되는 여러 가지 중저준위 방사성 폐기물의 유리고화처리를 위해 개발된 각 유리에 대한 내구성 평가를 위해 수행된 본 연구는 pH 및 온도에 대한 고화체의 내구성을 예측 또는 평가해 볼 수 있는 결과로서, 추가적인 실험 및 결과들을 통하여 본 유리고화체의 신뢰성을 얻을 수 있을 것으로 기대된다.