

## Pyroprocess 발생 LiCl폐염 고화체의 물리화학적 특성

박환서, 강소립, 손미숙, 조용준, 김인태  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150  
 hspark72@kaeri.re.kr

### 1. 서론

사용후 핵연료내 우라늄 및 초우란 원소를 회수하는 일련의 전해공정으로 이루어진 pyroprocess는 전해질로 사용되는 금속염화물내 방사성 핵종을 함유하는 방사성 폐기물을 발생시키며, 자연계의 위해성을 고려하여 고형화시켜 자연계로부터 고립, 처분되어야 한다. 금속염화물은 높은 휘발특성과 높은 용해특성으로 인하여 유리고화 공정이나 시멘트 고화공정과 같은 기존의 고화방법에 적용하기 어렵기 때문에, 금속염화물의 물리화학적 특성을 변화시켜 고화에 용이한 물질로 전환하는 것이 바람직하다. 미국의 ANL에서는 제올라이트를 이용하여 염화물을 sodalite( $\text{Na}_8\text{Al}_6\text{Si}_6\text{O}_{24}\text{Cl}_2$ )로 전환하는 방법을 제안하였는데, 수화학적 안정성은 우수한 반면 최종처분부피가 10배 이상 증가하는 단점을 가지고 있다. 일본에서는 1000°C 수준의 고온에서 봉산과 용융염을 반응시켜 봉산유리질로 전환시키는 방법을 제안하였다. 이 방법은 용융염을 유리질로 전환시키는 특성은 있으나 Cs이 고정되지 않아 휘발할 가능성이 있어 이에 대한 추가적인 처리가 필요하다는 단점이 있다. 본 연구팀에서는 솔젤법을 이용하여  $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$ 로 이루어진 무기합성매질을 이용하여 금속염화물과 반응시켜 얻어진 생성물을 봉규산유리와 혼합하여 고온열처리함으로써 균질고화체를 제조하는 방법을 제안하였다. 무기합성매질과 금속염화물을 반응시켜 얻어진 생성물은 열적안정성과 아울러 고화에 용이한 물질로 전환됨을 확인하였으며, 본 연구에서는 이와 같은 방법으로 제조된 고화체의 물리화학적 특성을 조사하고자 하였다.

### 2. 실험 및 결과

본 실험에 사용된 모의 폐용융염은 90wt%의 LiCl, 6.8wt% CsCl 그리고 3.2wt%의  $\text{ScCl}_2$ 로 이루어져 있으며 이를 무기합성매질인  $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$ 와 무게비가 1:2가 되도록 하여 혼합하여 650°C에서 16시간 반응시켰다. 얻어진 생성물을 봉규산유리 (7.7wt%  $\text{Na}_2\text{O}$ , 1.6wt% CaO, 22.8wt%  $\text{B}_2\text{O}_3$ , 8.8wt%  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 59.0wt%  $\text{SiO}_2$ )와 25wt%, 33wt% 및 42wt%로 혼합시켜 1150°C에서 3시간 동안 열처리하여 균질고화체를 제조하였다. 제조된 고화체는 SEM 및 XRD 분석을 통하여 상거동특성을 조사하였다. 또한 고화체의 내침출특성을 평가하기 위하여 단기침출시험법인 PCT-A 및 PCT-B시험, 동적침출시험법인 ISO법 및 온도 및 pH에 따른 내구성평가방법인 MCC-1시험법을 수행하였다.

그림 1은 SEM사진을 나타낸 것으로 고화체의 유리함량변화에 따른 morphology를 보여준다. 그림에서 보는 것처럼, silicate와 phosphate로 구성되는 domain-matrix구조의 특성을 나타내며, 유리함량의 변화에 따라 domain의 구성성분이 변화하는 것으로 볼 수 있었다. 유리함량이 상대적으로 낮을 경우, domain의 구성성분은 silicate로 이루어져 있으며, 유리함량이 높을 경우, domain의 구성성분은 phosphate로 이루어진 것을 확인하였다. 이러한 고화체의 구조적 특징은 고화체의 장기적 침출특성에 영향을 미칠 수 있는 중요한 인자로서, 이를 확인하기 위해 동적침출시험법을 수행하였으며, 그 결과를 그림 2에 나타내었다. 그림에서 보는 것처럼, 유리함량이 낮은 고화체의 경우, 90일에서 누적침출분율이 약 7-8%인 반면에 유리함량이 높은 고화체의 경우 누적침출분율은 1%이하로 나타났다. 이는 morphology의 특성을 고려하면, phosphate로 이루어진 상이 silicate로 이루어진 상보다 내구성이 약 10이상 낮은 것을 말해주며, 보다 높은 내구성을 얻기 위해서 필요한 고화체의 morphology는 silicate가 phosphate로 이루어진 domain을 차폐하는 구조로 가는 것이 유리함을 말해준다.

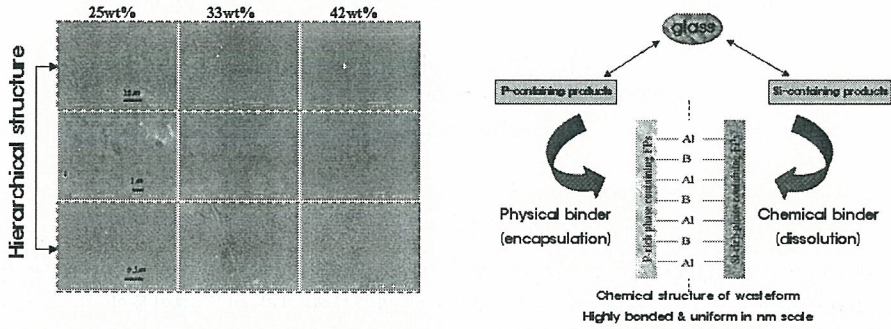


Fig. 1 고화체의 morphology 및 고형화 mechanism 모식화도

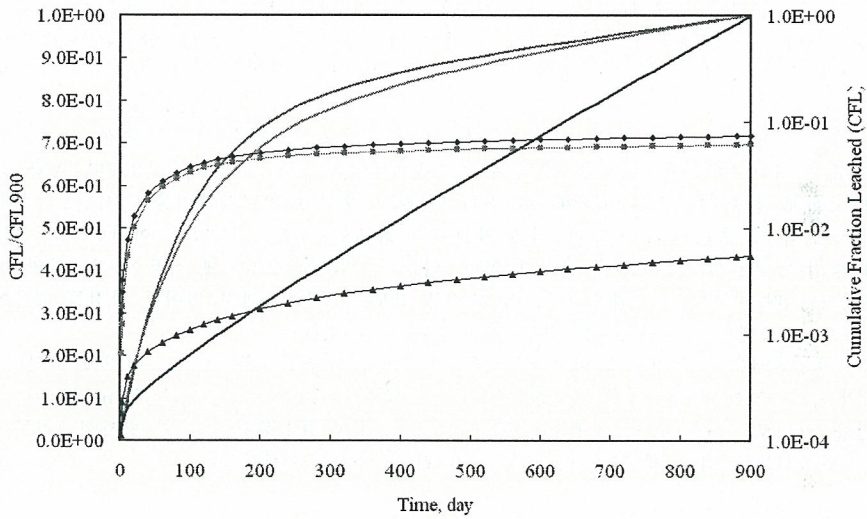


Fig. 2 고화체의 동적시험침출결과(누적침출분율 vs 침출시험기간)

### 3. 결론

파이로프로세스로부터 발생되는 폐용융염을 고형화시키기 위한 방법으로 무기합성매질을 이용하여 고화체를 제조하여 그 특성을 평가하고자 하였다. 제조된 고화체는 domain-matrix 구조로 이루어져 있으며, 이러한 구조의 구성성분에 따라 고화체의 내구성엔 영향을 받게 된다. 상기의 결과들로부터 고화체의 최적 morphology 를 설정할 수 있었으며, 여 침출특성까지 침출시험법이 현재 진행중에 있다.