

Fe₂O₃ 함량에 따른 유리고화체 균질성 평가

김득만, 김지연, 김천우

한수원중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70

kc2701@khnp.co.kr

1. 서론

미국 BWR(Boiling Water Reactor) 원전 폐수지의 종류는 크게 Reactor Water Clean-up System과 Fuel Pool Purification System에서 발생하는 Class B&C 폐수지와 Condensate Polishing System과 Liquid Radwaste System에서 발생하는 Class A 폐수지로 분류된다. 이중 Class B&C 폐수지는 대부분 소내에 저장하고 있다. Class A 폐수지는 주로 Condensate Polishing System에서 발생되며, 연간 발생량은 원자로당 약 51 m³ 정도이고 발생 후 HIC(high integrity container) 용기에 담겨져 처분장으로 이송된다. 이처럼 다량으로 발생하는 폐수지의 부피저감 및 안정화를 위해 유리화를 통한 폐수지 처리연구가 진행되고 있다. 미국 BWR 원전의 폐수지는 다량의 철(Fe)이온을 함유하고 있는 것으로 나타나 유리고화체 품질 및 경제성 평가를 위해 철함량에 따른 유리고화체내 용해도 평가가 필요하다[1]. 폐수지에 흡착되어 있는 철이온은 유리화과정에서 산소와 결합하여 대부분 Fe₂O₃ 형태로 변화되어 유리구조를 이룬다. Fe⁺³는 유리 매트릭스 내에 정사면체 구조와 팔면체 구조일 수 있는데 팔면체 구조에 있어서, Fe⁺³는 유리 네트워크를 느슨하게 만든다. 따라서 Fe₂O₃는 1,150°C에서 붕규산 유리에 첨가할 수 있는 제한치는 16.0 wt% 정도인 것으로 알려져 있다[2]. 즉, Fe₂O₃ 함량이 증가할수록 Waste Loading Rate도 증가하여 유리화에 따른 경제성이 향상되나 반면 유리고화체의 품질은 저하된다. 따라서 본 연구의 목적은 Fe₂O₃ 첨가함량을 보다 높일 수 있는 유리조성을 개발하여 폐수지 유리화에 따른 경제성을 향상시키는 데 있다.

2. 본론

2.1 폐기물 특성

국내 PWR(Pressurized Water Reactor) 원전 CVCS 폐수지는 Fe가 100~1,000 ppm 정도이나

미국 BWR 원전 폐수지는 Table 1에서와 같이 높게는 31,000 ppm 이상으로 대부분을 차지하고 그 외 Al, Ca, K, Si 등이 함유되어 있다. 총 미네랄 함량 또한 국내에 비해 약 2.5배 이상으로 높은 것으로 나타났다.

Table 1. Composition of US BWR spent resin generated from condensate polishing system (Element basis, ppm)[1].

Element	Concentration
Al	1052.0
B	13.0
Bi	50.5
Ca	942.5
Ce	89.5
Fe	31659.0
K	5046.5
Mg	197
Mn	212.5
Na	163.0
Nd	159.0
Pb	2.5
Si	8126.0
Sn	77.5
SO3	169.0
Te	0.5
Ti	133.5
V	69.0
Sum	48,162.5

2.2 유리제조

Table 1의 폐기물 조성을 바탕으로 Waste Loading Rate를 변화시킨 총 4개의 유리조성을 개발하였다. Waste Loading Rate와 Fe₂O₃ 함량은 Table 2와 같다.

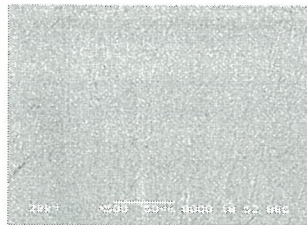
Table 2. Waste loading rate of glasses(wt%).

Waste Loading	35	40	45	50
Fe ₂ O ₃	21.59	24.79	27.89	30.98

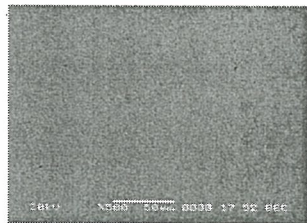
2.3 유리고화체 균질성 분석

Fe₂O₃ 함량이 다른 4개의 시편제조 후 주사전자현미경(Scanning Electron Microscope, JSM-

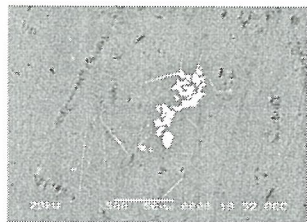
5600, JEOL Ltd.)을 이용하여 유리고화체의 표면 균질성을 분석하였다. Figure 1의 (a)에서 보듯이 Fe_2O_3 함량이 21.59 wt%인 유리고화체 표면은 균질하였으며 이보다 Fe_2O_3 함량을 증가시킨 Figure 1의 (b)의 경우 $1\ \mu\text{m}$ 미만의 nuclei가 발견되었으나 대체적으로 양호한 균질성을 보였다. Fe_2O_3 함량을 27.89 wt%로 증가시킨 Figure 1의 (c)에서는 Fe_2O_3 결정이 관찰되었으며 분포비율은 7.8 vol% 정도이었다. Fe_2O_3 함량이 약 31 wt%인 Figure 1의 (d)에서는 Fe_2O_3 가 8.8 vol%를 함유하고 있는 것으로 나타났다. 따라서 표면 균질성 분석결과 제조된 유리고화체내에 Fe_2O_3 가 약 25 wt%까지 용해될 수 있음을 확인하였다.



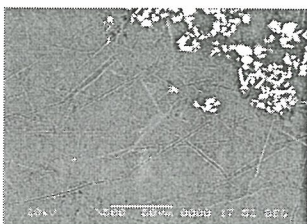
(a) Fe_2O_3 21.59 wt%



(b) Fe_2O_3 24.79 wt%



(c) Fe_2O_3 27.89 wt%



(d) Fe_2O_3 30.98 wt%

Fig. 1. SEM images of glasses at various Fe_2O_3 concentration.

3. 결론

철이온을 다량 함유하고 있는 미국 BWR 원전 폐수지 유리화를 위해 유리조성을 개발하였다. Fe_2O_3 함량별 유리고화체의 균질성을 평가한 결과 개발된 유리조성에 Fe_2O_3 는 약 25 wt%까지 용해가 가능한 것으로 나타났다. 이는 기존 국외 연구결과물에서 나타난 Fe_2O_3 16 wt%인 용해도에 비해 폐기물 감용비가 약 40% 이상 향상된 것으로 평가되었다.

4. 감사의 글

이 논문은 미국 Electric Power Research Institute(EPRI)의 지원을 받아 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] R. P. Denault, Vitrification of Low-Level Radioactive Waste(TR-105912), EPRI, 1996.
- [2] K. F. Whittington, C. C Chapman and R. D. Peters, Vitrification and waste glass compositional limit-an overview, PNL Glass Waste Form Characterization Database Project #21579, ORNL Purchase Order 10K-EXR29V, Oak Ridge National Laboratory, 1993.