

^{99}Tc 담지용 텔루라이트 유리 고화체

표재영^{1*}, 박환서², 허 종¹

¹포항공과대학교 첨단원자력공학부/신소재공학과, 경북 포항시 남구 청암로 77

²한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*vywodud@postech.ac.kr

1. 서론

파이로 공정은 사용후 핵연료를 플루토늄(Pu)의 분리 없이 재처리하여, 다시 핵연료로 이용할 수 있도록 하는 공정이다[1]. 파이로 공정에서 사용후 핵연료를 고온에서 산화할 때 휘발되는 Technetium(Tc)은 칼슘이 주성분인 필터 내에 $\text{Ca}(\text{TcO}_4)_2$ 의 형태로 포집된다. 특히 Tc^{7+} 이온은 이동성이 높고 지하수에 용해되기 쉬우며 반감기(2.1×10^5 년)가 길어 환경에 누출되지 않도록 영구적으로 격리시킬 필요가 있다. 또한 Tc은 붕규산염 유리 내 용해도가 낮고(0.3 wt.%) 유리화 공정 중 높은 온도에서 휘발성이 높아 안정적 처리가 용이하지 않은 문제점이 있다[2].

본 연구는 텔루라이트 유리를 담지체로 사용하여 Tc의 담지율을 극대화 할 수 있는 고화체 개발을 목표로 하였다. Tc은 화학적 성질이 유사한 비방사성 원소인 Rhenium(Re)으로 대체하여 실험을 진행하였다.

2. 본론

2.1 텔루라이트 유리 제조

Table 1은 본 연구에서 제조한 TeO_2 계 유리 조성이다. 혼합된 분말 20g을 알루미늄 도가니에 담아 730°C 에서 30 분간 용융 후 몰드에 부어 냉간하여 유리를 제조하였다.(Fig. 1) 또한 기본 조성 내 성분 비율을 동일하게 유지한 유리에 $\text{Ca}(\text{ReO}_4)_2$ 를 각각 1.60wt%, 3.19wt%를 첨가하여 유리를 제조하였다.

2.2 유리 기본 특성 평가

Fig. 2는 텔루라이트 유리의 XRD 분석 결과이다. $\text{Ca}(\text{ReO}_4)_2$ 의 함량이 3wt%까지 증가되어도 특정한 결정피크가 나타나지 않아, 완전한 유리상이 형성된 것으로 평가된다. 유리의 밀도를 Archimedes 원리를 이용하여 측정된 결과 4.219 g/cm^3 이었으며 $\text{Ca}(\text{ReO}_4)_2$ 가 3wt%까지 첨가되면 4.208 g/cm^3 로 감소하였다. TMA를 이용하여 유리전이 온도(T_g)와 열팽창계수를 측정된 결과 T_g 는 386.65°C 이고 열팽창계수는 $13.31 \times 10^{-6}/\text{K}$ 이다.

Table 1. Composition of tellurite glass. Each composition contains (a) 0wt% (b) 1.60wt% and (c) 3.19wt% of $\text{Ca}(\text{ReO}_4)_2$

Element	Composition (wt%)		
	(a)	(b)	(c)
$\text{Ca}(\text{ReO}_4)_2$	0	1.60	3.19
TeO_2	76.76	75.53	74.31
Al_2O_3	9.64	9.49	9.34
B_2O_3	6.58	6.48	6.38
Na_2O	3.90	3.85	3.78
CaO	3.09	3.05	3.00
Total	100	100	100

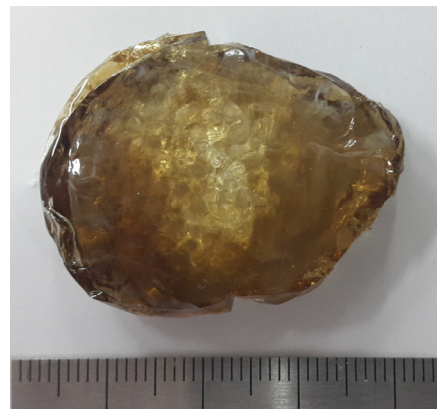


Fig. 1 Photo image of glass (b).

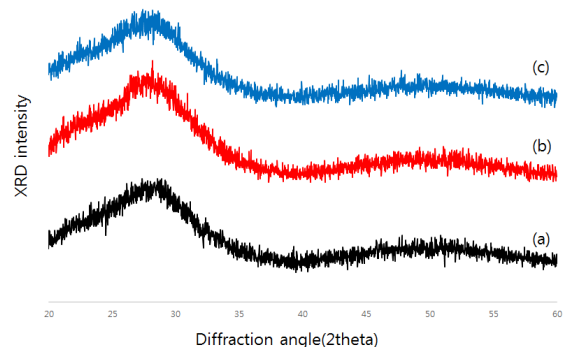


Fig. 2. X-ray diffraction(XRD) patterns of the tellurite glass specimens contained (a) 0wt% (b) 1.60wt% and (c) 3.19wt% of $\text{Ca}(\text{ReO}_4)_2$.

2.3 유리 내 레늄 담지율 분석

Table 2는 유도결합 플라즈마 질량분석기(ICP-MS) (PerkinElmer Elan 6100 DRC)를 이용하여 유리 내부 레늄의 양을 분석한 결과이다. 담지율이란 초기에 분말로 첨가한 레늄 대비 용융 후 유리에 존재하는 레늄의 양의 비율을 의미하며, 텔루라이트 유리는 $\text{Ca}(\text{ReO}_4)_2$ 을 3wt% 까지 첨가 하여도 90%이상의 담지율을 나타내었다.

Table 2. Analyzed (ICP-MS) Re concentration and retention in samples with various $\text{Ca}(\text{ReO}_4)_2$ additions

$\text{Ca}(\text{ReO}_4)_2$ addition (wt%)	Added Re (wt%)	Analyzed Re (wt%)	Retention (%)
1.60	1.10	1.05	95.45
3.19	2.20	2.02	91.82

2.4 유리 담지체의 화학적 내구성 평가

고화체의 화학적 내구성을 평가하기 위해 ASTM C 1285-2 기준에 따라 Product Consistency Test(PCT)를 수행하였다. 75-150 μm 의 크기로 분쇄한 유리 파우더 1.5 g을 15 ml의 DIW에 넣어 90°C에서 7 일간 침출 시켜 용액의 내부에 침출된 원소를 유도결합 플라즈마 방출분광기(ICP-AES) (PerkinElmer OPTIMA 4300 DV)로 분석하여 내구성을 평가하였다. Table 3은 침출 실험 결과이다. 모든 원소가 미국 Hanford 고/저준위 유리화 규제치인 2 g/m^2 보다 낮아 화학적으로 비교적 안정된 유리로 평가되었다.

Table 3. Normalized elemental releases (g/m^2) for PCT from tellurite glass

	Normalized elemental releases (g/m^2)
Te	0.2868
Al	0.0265
B	0.8152
Na	1.0997
Ca	0.0735

3. 결론

파이로 공법에서 발생하는 Tc을 처분하기 위한 고화체로 텔루라이트 유리를 제조하였다. 텔루라이트 유리는 $\text{Ca}(\text{ReO}_4)_2$ 가 결정이나 2차상이 형성되지 않았으며 Re 이온이 90%이상 담지됨을 알 수

있었다. 또한 화학적 내구성 역시 기준치 이상으로 측정되었다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발사업을 통해 수행 되었습니다. (NRF No. 2015M2A7A1000191).

5. 참고문헌

- [1] LEE et al., Pyroprocessing Technology Development at KAERI, NUCLEAR ENGINEERING AND TECHNOLOGY, VOL.43 NO.4 AUGUST 2011.
- [2] John S. McCloy et al., Rhenium Solubility in Borosilicate Nuclear Waste Glass: Implications for the Processing and Immobilization of Technetium-99 at PNNL, Environ. Sci. Technol. 2012, 46.