

파이로그린 공정 발생 희토류 폐기물 유리고화체의 처분적합성 평가

황영환*, 황석주, 이병관, 김천우

한국수력원자력(주) 중앙연구원, 대전광역시 유성구 유성대로 1312번길 70

*yhhwang7@khnp.co.kr

1. 서론

사용후핵연료를 안전하게 처리하기 위한 건식처리 방식인 파이로프로세싱 (PyroProcessing)에서 발생하는 고준위 폐기물을 중준위화하는 파이로그린(PyroGreen) 공정에 대한 다양한 연구가 수행되고 있다[1]. PyroGreen 공정내 염폐기물 처리공정인 PyroRedSox 공정에서 발생하는 희토류폐기물의 안정화를 위하여 유리화 기술개발이 수행중이다. 유리화 공정 개발을 위해 고려되어야 할 요인들은 waste loading, 운전용이성, 유리고화체 처분적합성 등이 있다. 유리화 기술의 주요 공정변수는 용융 유리의 점도, 전기전도도 등이 있으며, 생산된 유리고화체는 균질성, 화학적 내구성, 비방사능, 열발생률 등의 처분 기준을 만족하여야 한다. 본 연구에서는 파이로그린 공정 발생 희토류폐기물을 유리화하기 위해 개발된 유리고화체의 처분적합성을 평가하기 위해 화학적·기계적 안정성을 시험하고 분석하였다.

2. 본론

2.1 유리고화체 균질성 평가

제작된 유리고화체의 균질성을 평가하기 위해 SEM/EDS를 활용해 5,000배에서 원소별 mapping을 수행하였다. Fig. 1.에서 보이는 것처럼 유리를 구성하는 Na, Al, Si 및 다양한 희토류 원소들이 전체적으로 균일하게 분포하고 있는 것을 확인할 수 있다.

2.2 유리고화체 침출시험

제작된 유리고화체의 화학적 내구성을 ANS 16.1을 적용하여 평가하였다. 파이로그린 공정 발생 희토류폐기물 유리화를 위한 표준 유리 조성에 Co, Sr, Cs을 각각 0.49wt% 첨가하여 유리고화체를 제조하고, 제작된 유리고화체를 대상으로 침출 시험을 수행하였다. 시험 수행 중 채취한 용액의 주요 핵종의 농도를 측정하여 Table 1에 나타내었다. 첨가된 Cs, Co, Sr은 시험 시작부터 120 hrs

까지는 검출되지 않았다. 456 hrs, 1128 hrs, 2160 hrs 에서는 Table 1과 같이 검출되었는데, 이를 이용하여 침출지수를 계산하였다.

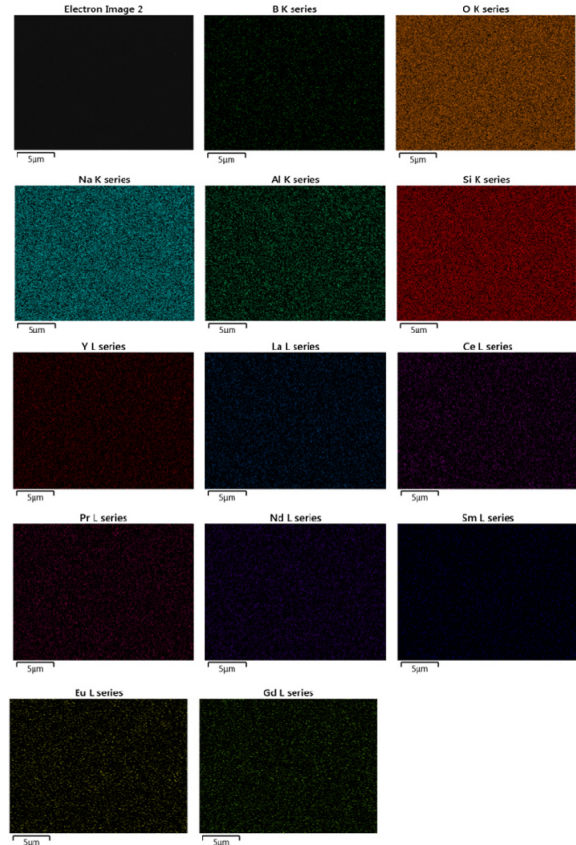


Fig. 1. SEM/EDS Element Mapping.

침출지수 (L_i)는 아래의 식 (1)~(3)을 이용하여 계산하였다[2].

$$D = \pi \left[\frac{a_n/A_0}{(\Delta t)_n} \right]^2 \left(\frac{V}{S} \right)^2 T \quad (1)$$

$$T = [1/2(t_n^{1/2} + t_{n-1}^{1/2})]^2 \quad (2)$$

$$L_i = \frac{1}{n} \sum_1^n [\text{Log}(1/D_i)] \quad (3)$$

Cs, Co, Sr은 2 ~ 120 시간구간 사이에는 침출되어 나오지 않아 침출지수계산에서 제외하였다. 위의 식을 이용하여, 456 ~ 2160 시간구간에 대한 평균값을 구한 Cs, Co, Sr의 침출지수는 각각 10.4, 10.6, 9.8이다. 계산된 침출지수는 처분적합성 침출지수기준인 6을 크게 상회해, 제작된 유리

고화체는 우수한 화학적 내구성을 갖는 것으로 평가되었다.

Table 1. Results of Leached Elements (Cs, Co, Sr) Concentrations by ANS 16.1

Test	Element	Concentration
2 hrs	Cs	N.D.
	Co	N.D.
	Sr	N.D.
7 hrs	Cs	N.D.
	Co	N.D.
	Sr	N.D.
24 hrs	Cs	N.D.
	Co	N.D.
	Sr	N.D.
48 hrs	Cs	N.D.
	Co	N.D.
	Sr	N.D.
72 hrs	Cs	N.D.
	Co	N.D.
	Sr	N.D.
96 hrs	Cs	N.D.
	Co	N.D.
	Sr	N.D.
120 hrs	Cs	N.D.
	Co	N.D.
	Sr	N.D.
456 hrs	Cs	3.91 $\mu\text{g/L}$
	Co	2.65 $\mu\text{g/L}$
	Sr	7.54 $\mu\text{g/L}$
1128 hrs	Cs	8.76 $\mu\text{g/L}$
	Co	5.76 $\mu\text{g/L}$
	Sr	16 $\mu\text{g/L}$
2160 hrs	Cs	14.4 $\mu\text{g/L}$
	Co	8.5 $\mu\text{g/L}$
	Sr	19.8 $\mu\text{g/L}$

2.3 유리고화체 침수시험 후 압축강도시험

유리고화체의 처분적합성을 평가하기 위해 국내 중저준위 처분장에서 요구하는 고화체 대상 시험법을 적용하였다. KS F2405 시험법을 사용하여 유리고화체의 기계적 특성을 평가하기 위해 1,200°C에서 제조한 유리 용융물을 500°C로 예열된 몰드에 주입하고 약 12시간 동안 서냉시켜 시편을 제작하였다. 침수시험을 수행하기 위해 제작된 원통형 시편 (지름 약 3 cm, 높이 약 6 cm)을 DI water에

90 일 동안 보관 후 분당 0.12 mm의 속도로 가력하여 파괴하중 및 변위를 측정하였다.

90 일 동안 침수시킨 유리고화체의 압축강도를 측정한 결과 15,399 psi로 기준치인 500 psi를 초과하는 우수한 기계적 안정성을 보이는 것으로 측정되었다 (Fig. 2 참조).

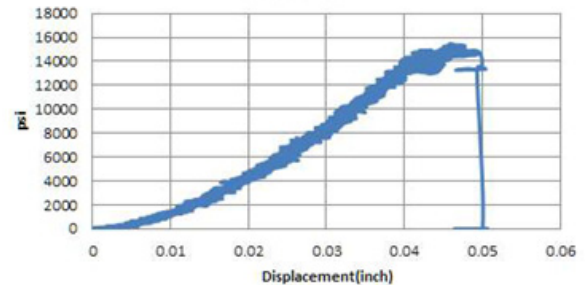


Fig. 2. Compressive Strength Result of 90 Days Immersed Glass.

3. 결론

사용후핵연료 재활용 기술인 PyroGreen 공정의 PyroRedSox 처리공정에서 발생하는 희토류폐기물의 유리화를 위해 제작된 유리고화체의 균질성을 평가하였다. SEM/EDS를 활용한 원소 mapping을 수행한 결과 전체적으로 균일한 것을 확인할 수 있었다. 유리고화체의 화학적 안정성을 평가하기 위해 침출시험을 수행한 결과, Cs, Co, Sr의 침출수치가 각각 10.4, 10.6, 9.8로 우수한 화학적 안정성을 갖는 것 확인하였다. 유리고화체의 침수시험을 통해 기계적 안정성을 평가한 결과 침수시험의 압축강도가 15,399 psi로 우수한 안정성을 보이는 것을 확인하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 지원을 받아 2014년도 원자력연구개발사업 및 원자력선진기술연구센터과제를 통해 수행되었음 (NRF-2011-0031839).

5. 참고문헌

- [1] 원자력선진기술연구센터, “파이로그린 공정 폐기물 유리화 타당성 연구” 보고서 (2012M2B2B1056446).
- [2] Vitreous State Laboratory, “Glass Formulation and Testing With TWRS LAW Simulants” Final Report (1998).