

Immobilization of Radioactive Rare Earth oxide Waste by Solid Phase Sintering

고상소결에 의한 방사성 희토류산화물의 고화

Byung-Gil Ahn¹⁾, Hwan-Seo Park, Hwan-Young Kim, Han-Soo Lee and In-Tae Kim

Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeok-daero, Yuseong-gu, Daejeon

안병길¹⁾, 박환서, 김환영, 이한수, 김인태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

(Received December 23, 2009 / Revised February 23, 2010 / Approved March 05, 2010)

Abstract

In the pyroprocessing of spent nuclear fuels, LiCl-KCl waste salt containing radioactive rare earth chlorides are generated. The radioactive rare earth oxides are recovered by co-oxidative precipitation of rare earth elements. The powder phase of rare earth oxide waste must be immobilized to produce a monolithic wastefrom suitable for storage and ultimate disposal. The immobilization of these waste developed in this study involves a solid state sintering of the waste with host borosilicate glass and zinc titanate based ceramic matrix(ZIT). And the rare-earth monazite which synthesised by reaction of ammonium di-hydrogen phosphate with the rare earth oxides waste, were immobilized with the borosilicate glass. It is shown that the developed ZIT ceramic wastefrom is highly resistant the leaching process, high density and thermal conductivity.

Key words : rare earth oxide, immobilization, solid phase sintering, monazite, borosilicate glass

요약

Pyroprocessing에 의한 사용후핵연료 처리 과정에서 방사성 희토류 염화물이 포함된 폐용융염이 발생된다. 이러한 폐 용융염 내에 존재하는 방사성 희토류 염화물을 산화물로 침전시켜 회수함으로써 용융염을 재생할 수 있다. 최종적으로 발생하는 방사성 희토류 산화물의 저장과 처분에 적합한 monolithic 고화체를 제조하기 위한 연구를 수행하였다. 본 연구에서는 고상 소결에 의해 붕규산 유리에 의한 고화체 제조, 희토류 산화물을 모나자이트로 합성한 후 붕규산 유리에 의한 고화체 제조를 수행하였다. 또한 zinc titanate 세라믹이 주요성분인 고화 매질(ZIT)을 개발하여 고화체를 제조하였으며 각각의 고화체에 대한 침출 및 물리화학적 특성을 비교 평가하였다. 고상 소결에 의해 제조된 ZIT 매질 고화체는 내 침출성이 크며 밀도가 크고 열전도도가 우수한 특성을 나타내었다.

중심단어 : 희토류 산화물, 고화, 고상 소결, 붕규산 유리, 모나자이트

1) Corresponding Author. E-mail : bgan@kaeri.re.kr

I. 서론

사용후 핵연료로부터 유용한 물질을 회수하여 고속로의 연료로 재활용하는 방법에 있어서 건식기술(Pyroprocessing technology)은 핵확산 저항성이 크며, 장치가 단순하고 폐기물 발생량이 적은 장점이 있다[1, 2]. 한국원자력연구원에서 개발 중인 건식공정은 전해환원, 전해제련, 전해정련, 염폐기물 재생·고화공정 등으로 구성되어 있다[3,4]. 이들 공정 중 전해정련 및 전해제련 공정은 공용염(LiCl-KCl) 매질에서 전기화학적 방법에 의해 우라늄 및 TRU물질을 회수하게 된다. 이러한 작업 중 란타계 핵분열 물질이 주 성분인 방사성 희토류(Rare Earth, RE) 염화물이 포함된 폐 공용염이 발생한다. 이러한 공정에서 발생하는 폐 공용염 내에 존재하는 방사성 희토류 물질을 제거한 후 재사용 가능한 공용염으로 재생하여 재순환 사용함으로써 폐기물 발생량을 크게 줄일 수 있다.

한국원자력연구원에서 개발된 폐 공용염 재생공정은 산소분산 방법에 의해 희토류 염화물을 산화물로 침전시키고 상온으로 냉각 후 순수 공용염 층인 상부와 희토류 산화물이 존재하는 하부의 잔류염으로 분리한다[5]. 잔류염은 진공 증류를 통해 순수 공용염을 회수하고 잔존하는 희토류 산화물은 최종 방사성 폐기물로 발생된다. 이러한 방사성 희토류 산화물은 평균입경이 약 5 μm 인 미세 분말 상이므로 최종 처분에 적합한 안정한 고화체로 제조되어야 한다. 분말상의 희토류 산화물로만 구성된 방사성 폐기물에 대한 고화체 제조에 대한 연구는 거의 전무한 상태이며, 단지 초우란 물질의 고화체 제조 연구에 따른 대체물로서 희토류 원소인 Nd, Ce 산화물의 붕규산유리에 대한 용해도 연구를 수행한 결과들이 일부 있다[6]. 상업적으로 적용되는 고준위 폐기물의 유리화 방법은 붕산계 유리를 유도로에서 고화 대상 폐기물과 용융/분해 후 용융물을 고화 드럼에 부은 후 균열을 방지하기 위한 열처리 단계를 거쳐 고화체를 제조하게 된다. 이 방법은 고주파 유도를 위한 내부 조성물의 조절, 유지 보수, 부식에 따른 폐기물 발생량 증대, 복잡한 구성 요소, 고온으로 인한 휘발 핵종의 포집 등과 같은 문제점이 있다.

고준위 폐기물의 고화매질로 많은 연구가 진행 중인 Synroc은 자연계에서 우라늄과 토륨 같은 방사성 동위원소를 결정 격자 내에 함유하고 있는 천연광물을 구성 광물로 하여 인공적으로 합성한 고화매질이다[7-9]. Synroc의 주요 구성광물은 zirconolite(CaZrTi₂O₇), Perovskite(CaTiO₃), hollandite(BaAl₂Ti₆O₁₆) 등이다. 고화체 제조 공정은 oxide route 또는 sandia route에 의해 synroc 분말을 제조하고 이

들 분말을 약 1200 °C의 고온에서 15~60 MPa의 압력으로 고온 기압 소결공정에 의해 고화체를 제조하게 된다. 또한 상압 소결공정은 약 300 MPa이상의 압력으로 냉간 압축하여 만든 성형체를 약 1300 °C에서 8 시간 이상 소결하여 고화체를 제조한다. 이러한 방법들은 고온 고압의 조건이 요구되므로 공정의 안정성, 압축과정에서의 분말의 비산 등 많은 문제점이 있다. 반면에 희토류 산화물을 세라믹 물질로 제조하는데 있어서 비교적 저온 조건에서 합성이 가능한 물질은 악티나이드 고정화 광물로서 많이 연구되고 있는 모나자이트(REPO₄), 아파타이트 [Ca_{4-x}RE_{6+x}(SiO₄)_{6-y}(PO₄)_y(O,F)₂] 등이 있다[10, 11].

본 연구에서는 이러한 방사성 희토류 산화물의 고화체 제조에 있어서 제조 공정이 단순하며 대체로 저온 조건에서 고화체를 제조할 수 있는 고상소결(또는 분말 소결)에 의한 고화체 제조방법에 대하여 연구하였다. 연구내용은 프랑스에서 고준위 폐기물의 유리고화체 제조에 사용되는 붕산계 유리인 R7T7 유리 매질에 의한 희토류 산화물 고화체 제조, 희토류 산화물을 희토류 모나자이트(RE-monazite)로 합성 후 붕규산유리에 의한 고화체 제조, 모나자이트계 세라믹 고화매질인 CaHPO₄-ZnO-TiO₂-SiO₂-B₂O₃ 로 구성된 고화 매질인 ZIT(Zinc Titanate)을 개발하여 희토류 산화물 고화체로 각각 제조하였으며, 이들 고화체에 대한 침출특성, 열 전도도, XRD, SEM-EDS 등 물리, 화학적 특성을 비교 평가하였다.

II. 실험

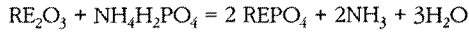
가. 고화매질 제조

실험에 사용된 희토류 산화물은 Origen code에 의해 계산된 결과로부터 Nd, Ce, Y, La 산화물을 대상으로 수행하였으며 Rare Metallic사 시약을 사용하였다. 유리 고화체의 매질로 사용된 붕규산 유리(R7T7)의 조성을 표 1에 나타내었으며, 각각의 조성비에 따라 원료물질을 혼합 및 1200 °C에서 4시간동안 질소 분위기의 전기로에서 용융 후 증류수에 급냉하여 얻어진 것을 동일 방법으로 재 용융 냉각 후 disk mill로 분쇄하여 붕규산 유리 분말을 제조하여 유리매질로 사용하였다. 희토류 산화물에 대한 RE-monazite 합성 방법은 건식 합성방법

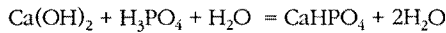
Table 1. Composition of R7T7 glass frit.

Component	R7T7 Glass Frit
SiO ₂	56.7
B ₂ O ₃	12.4
Al ₂ O ₃	2.6
MgO	2.1
CaO	4.1
Na ₂ O	17.5
TiO ₂	4.6

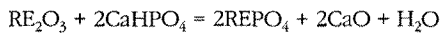
에서 일반적으로 사용되는 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ (ADP, Ammonium Dihydrogen Phosphate)를 희토류 산화물과 반응 당량으로 섞은 후 Zircon mortar로서 완전히 혼합하였으며, 반응온도에 따른 모나자이트 합성 결과를 XRD 분석 결과로부터 도출하였다. 반응 시간은 각각 1시간으로 하였고 반응 온도는 600~900 °C로 하였으며 반응식은 다음과 같다.



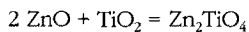
ZIT 세라믹 고화매질은 monazite계 세라믹 고화체 제조를 위해서 phosphate 화합물 원료는 CaHPO_4 (CHP, Calcium mono-Hydrogen Phosphate)를 사용하였으며 반응식은 다음과 같다.



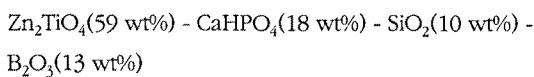
제조 방법은 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 를 약 3배 용량의 증류수에 분산 시킨 것을 약 7배 용량으로 증류수에 희석된 H_3PO_4 용액을 교반하면서 조금씩 넣어서 침전물을 얻었다. 그 후 침전물을 여러 번 증류수로 세척 후 여과 및 건조하여 CHP를 제조하였다. CHP를 원료물질로 사용하면 희토류 산화물을 ADP와 반응시키는 전처리 공정이 필요 없고 반응 중에 기체 발생량이 적으며 내구성이 큰 Ca 원소를 활용할 수 있는 많은 장점이 있다. CHP와 희토류 산화물과의 반응식은 다음과 같다.



RE-모나자이트 합성에 있어서 ADP의 경우 NH_3 2 mole 및 H_2O 3 mole의 기체가 발생되는 반면에 CHP의 경우는 1 mole의 H_2O 가 발생되므로 상대적으로 기체 발생이 매우 적다. ZIT 세라믹 고화매질의 구성 성분인 zinc titanate 제조는 ZnO 와 TiO_2 를 다음 반응식의 당량비로 혼합 후 약 900 °C에서 5 시간 동안 반응시켜 제조하였다.



이들 원료물질들과 SiO_2 및 B_2O_3 의 혼합비를 변화시켜 소결체 제조 특성 실험으로부터 다음과 같은 ZIT 고화매질 조성을 도출하였다.



나. 고화체 제조

희토류 산화물 유리고화체, 모나자이트 유리고화체 및 ZIT 세라믹 고화체의 특성을 비교 평가하기 위해서 고화체를 제조하였다. 3 종류의 고화체 제조 조성을 표 2에 나타내었다. 희토류 산화물 함유량은 20 wt%로 고정하였으며, RE-모나자이트의 경우는 희토류 산화물을 기준으로 하여 동일한 양을 첨가하였다. 고화체 제조는 희토류 산화물 20 wt% 기준으로 하여 고화매질인 R7T7 또는 ZIT을 혼합 후 graphite 도가니에 넣고 질소 분위기의 전기로에서 승온속도를 10 °C/min 으로 하여 1100 °C에서 4 시간동안 소결 후 전원을 차단하여 전기로에서 자연 냉각하여 분말 소결에 의해 고화체를 제조하였다.

III. 결과 및 고찰

가. 희토류산화물 유리고화체

R7T7 유리에 의한 Nd_2O_3 (20 wt%) 고화체에 대한 XRD 분석 결과를 그림 1에 나타내었다. 이 그림을 보면 유리를 구성하는 비정질 peak에 oxy-apatite[$\text{Ca}_2\text{Nd}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$]의 peak가 존재함을 알 수 있었다. 이러한 XRD 결과로부터 oxy-apatite 결정상을 확인하기 위하여 파단면(fracture surface)에 대한 SEM-EDS 분석을 수행하였으며 그 결과를 그림 2에 나타내었다. 이 그림을 보면 약 10 μm 크기의 Nd/Si/Ca로 구성된 육각형 모양의 결정체가 불균일하게 형성되어 있음을 알 수 있다. 그리고 결정상인 S2 point와 유리상인 S3 point에서 Nd의 농도는 각각 41.9 및 1.4 atomic%를 나타내었으며, 또한 결정상에는 Si와 Ca가 각각 16.6 및 10.1 atomic% 존재함을 알 수 있다. 또한 Si 및 Nd

Table 2. Composition of RE-oxide wasteform (wt%)

	Glass Wasteform	Monazite Glass Wasteform	ZIT ceramic Wasteform
Zn_2TiO_4			48
CaHPO_4			14
SiO_2			8
B_2O_3			10
RE-Oxide(mixture)*	20	20**	20
R7T7 glass	80	80**	

*Simulated composition of RE oxides; Nd_2O_3 59wt%, CeO_2 23 wt%, La_2O_3 12wt% 및 Y_2O_3 6wt%
 RE-monazite 28.2wt%, *R7T7 glass 71.8wt%

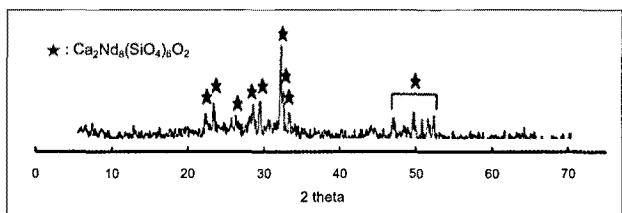


Fig. 1. XRD pattern of vitrified product prepared by R7T7 glass frit and 20 wt% of Nd_2O_3 .

에 대한 back-scattering image를 보면 Nd가 존재하는 부분에 Ca와 Si가 유사하게 존재함을 알 수 있다. 이러한 XRD 및 SEM 분석 결과로부터 고화체를 구성하는 유리의 주요 구성물인 Si와 Ca가 희토류 산화물과 반응하여 oxy-apatite를 형성함을 알 수 있었다. 따라서 결정질 주위의 유리 매질은 3차원 망목구조 형성체(network former)인 Si와 망목구조 수식제(network modifier)인 Ca이 소실되어 망목 구조가 붕괴됨으로서 불안정한 고화체가 형성됨을 알 수 있다.

나. 희토류 산화물의 monazite 합성

반응온도에 따른 Nd₂O₃와 ADP의 모나자이트 합성물에 대한 XRD 분석 결과를 그림 3에 나타내었다. 이 그림을 보면 반응온도의 증가에 따라 산화물 고유 피크가 점차 줄어들고 모나자이트 피크가 나타남을 알 수 있다. 약 450~550 °C에서 모나자이트가 형성되기 시작하며, 950 °C에서는 대부분이 모나자이트이며 미 반응 산화물도 미량 존재함을 알 수 있다. CeO₂의 반응 생성물에 대한 XRD 분석결과(그림 4) 650 °C에서도 모나자이트와 미반응물이 미량 존재함을 알 수 있다. 이러한 결과는 CeO₂는 4가이기 때문에 그림 5

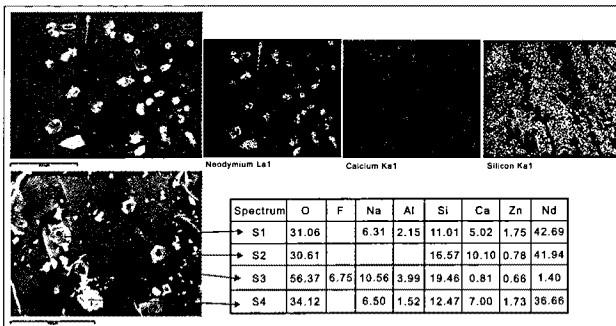


Fig. 2. SEM images and EDS results of fracture surface of the vitrified product prepared by R7T7 glass frit and 20 wt% of Nd₂O₃.

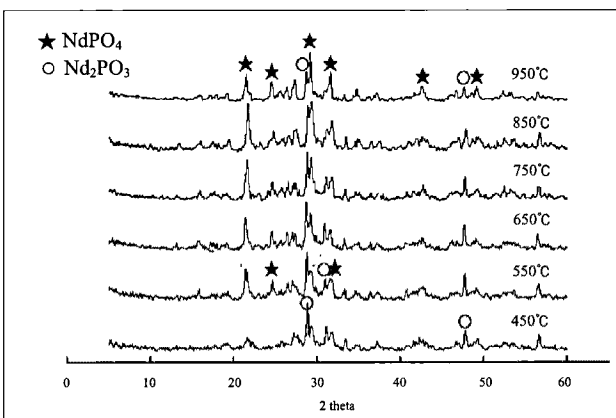


Fig. 3. XRD patterns of reaction product of Nd₂O₃ with ammonium di-hydrogen phosphate according to different temperature for 1 hr reaction.

와 같이 복잡한 경로를 통해 Ce 모나자이트가 합성되며[12], 중간 생성물 형성온도에 대한 정확하지는 않지만 600~800 °C에서 부분적으로 Ce-모나자이트가 형성되며, 약 1300 °C에서 반응이 완료된다. 따라서 실제 공정에 적용하기 위한 전처리 공정을 650 °C에서 합성할 경우 미반응물이 형성될 것이고 유리와 혼합하여 소결에 의해 약 1100 °C에서 고화체를 제조할 경우 소결 과정 중에 미 반응물인 Ce⁴⁺P₂O₇ 등의 열분해로 인한 산소의 발생을 예측할 수 있으며, 따라서 고화체 내부에 기공을 형성할 수 있음을 예측할 수 있다.

다. ZIT 고화 매질 및 고화체

① CHP 및 zinc-titanate

제조된 CHP에 대한 XRD 분석 결과를 나타낸 그림 6을 보면 순수한 CHP 임을 확인할 수 있었다. 또한 zinc titanate에 대한 XRD 분석 결과를 그림 7에 나타내었다. 이 그림을 보면 소결 전에 존재하던 ZnO와 TiO₂ peak 없어지고 zinc titanite의 peak만 존재함을 알 수 있다.

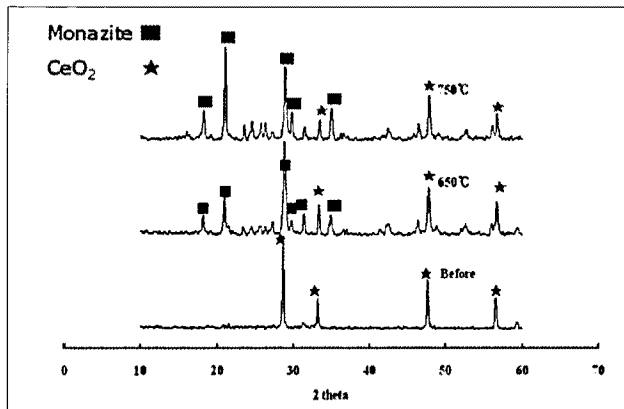


Fig. 4. XRD patterns of reaction product of CeO₂ with ammonium di-hydrogen phosphate according to different temperature for 1 hr reaction.

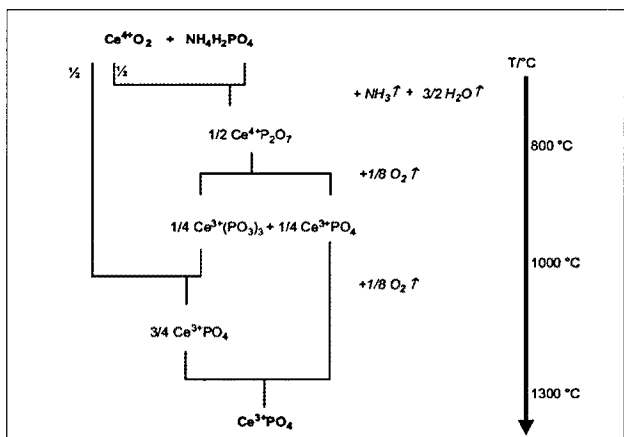


Fig. 5. High temperature solid-state synthesis mechanism of Ce³⁺ PO₄ from a Ce⁴⁺O₂ + NH₄H₂PO₄ starting mixture.

② ZIT 세라믹 고화체

ZIT 고화 매질에 의해 희토류 산화물 모의 조성 혼합물 (simulated composition of RE oxides; Nd₂O₃ 59 wt%, CeO₂ 23 wt%, La₂O₃ 12 wt% 및 Y₂O₃ 6 wt%) 20 wt%를 분쇄 및 혼합하여 1100 °C에서 4시간 소결하여 제조된 ZIT 세라믹 고화체의 파단면에 대한 SEM 분석결과를 그림 8에 나타내었다. 이 그림을 보면 치밀한 구조로 구성되어 있으며 수 micron 크기의 pore가 존재함을 볼 수 있다. 또한 back scattering image를 보면 구성 원소들은 거의 균일하게 분포하고 있음을 알 수 있다.

라. 고화체 특성

① 고화체 물리화학적 특성

제작된 고화체 사진과 밀도, 열전도도 (thermal conductivity, Wm⁻¹K⁻¹) 및 비열 (specific heat, J g⁻¹K⁻¹) 분석 결과를 그림 9와 10에 각각 나타내었다. 그림 9의 고화체 사진을 보면 동일한 무게(40g)로 제조된 고화체임에도

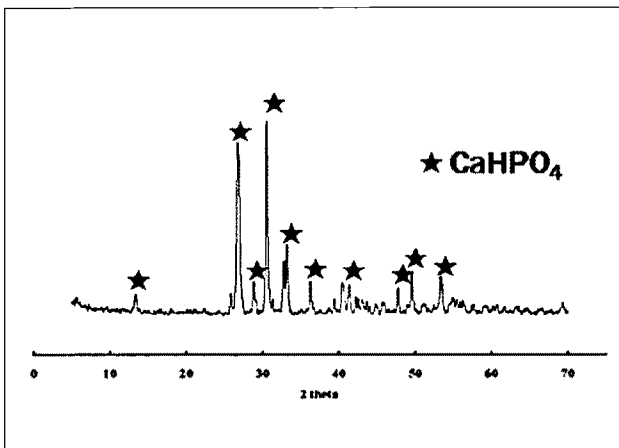


Fig. 6. XRD pattern of CaHPO₄.

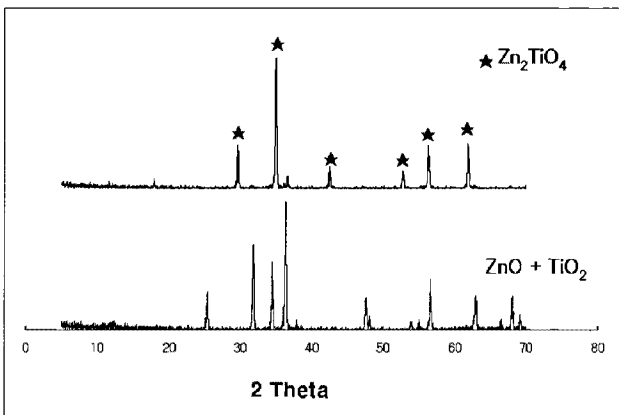


Fig. 7. XRD patterns of Zn₂TiO₄ and mixture of ZnO and TiO₂.

큰 차이가 있음을 알 수 있고, 유리 고화체와 모나자이트 유리 고화체에는 많은 기공이 존재함을 알 수 있다. 물리적 특성에 대한 분석 장비는 NETZSCH LFA 447를 사용하였으며, 열전도도는 처분장에서 고화체 외부 유지 온도와 유사한 100 °C 조건에서 분석하였다. 이 그림으로부터 유리가 기본인 고화체의 밀도는 약 2.3 g/cm³이며, ZIT 세라믹 고화체는 3.6 g/cm³ 으로 약 1.4배의 큰 밀도를 나타내었다. 또한 열전도도는 유리 고화체의 경우 약 1.0, ZIT 세라믹 고화체는 1.7 Wm⁻¹K⁻¹로서 우수한 열전도도 값을 나타내었다. 비열은 유리 고화체가 0.98, 모나자이트 유리 고화체 0.71 및 ZIT 세라믹 고화체는 0.65 J g⁻¹K⁻¹를 나타내었다.

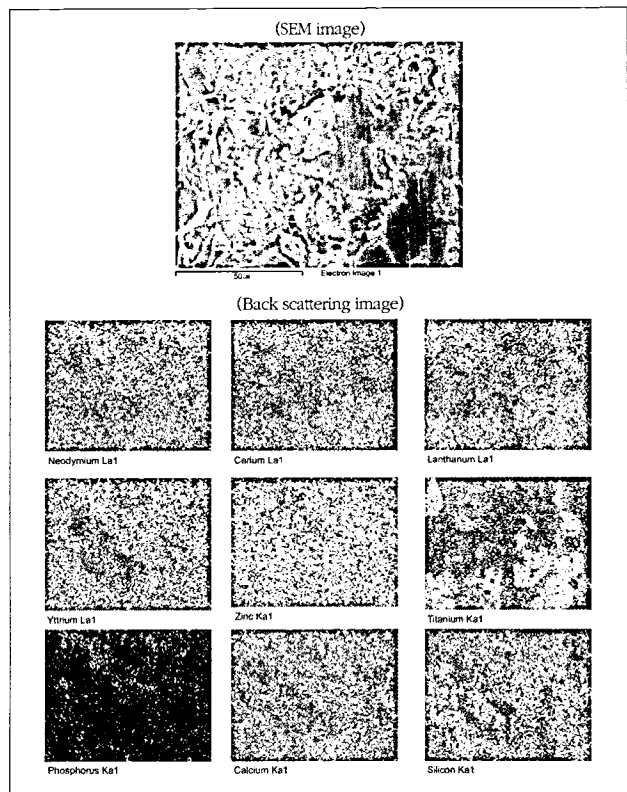


Fig. 8. SEM and back scattering images of ZIT ceramic wasteform.

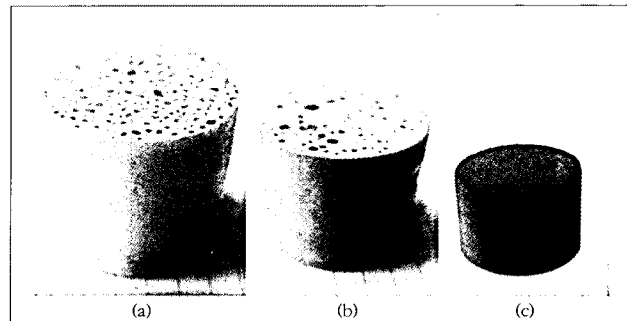


Fig. 9. Photographs wasteform; (a) RE-oxide glass, (b) RE-monazite glass and (c) ZIT ceramic wasteform

이러한 결과들로부터 ZIT 세라믹 고화체는 우수한 특성을 나타내었으며, 특히 처분시 열전도도가 크므로 고화체 내부 center line temperature를 저하시킬 수 있는 특성이 있으므로 발열성 핵종에 의한 열적 손상을 줄일 수 있다. 또한 Vicker's 경도값은 3종 고화체 모두 약 5.5 GPa 값을 나타내었다. 고화체의 밀도값으로 부터 고화체 체적을 1L로 하고 폐기물 함량을 20 wt%로 하였을 때 폐기물 함량을 계산하면 유리 매질 고화체는 약 450 g, 세라믹 고화체는 약 730 g의 폐기물을 수용할 수 있으므로 약 1.6배의 감용 효과를 나타내었다.

② 고화체 침출 특성

제조된 고화체에 대한 침출 특성은 PCT-A 방법에 의해 수행하였으며[13], 90 ℃에서 7일 동안 유지 후 침출액을 마이크로 필터로 여과 후 여액을 ICP-MS로 이온의 농도를 분석하였으며, 다음 식에 의해 침출속도를 계산하였다.

$$LR_i = m_i / (f_i * SA * t)$$

LR_i; 원소 i의 침출속도(g/m² day)

m_i; 침출액에서 원소 i의 질량

f_i; 침출 전 시료 중 i 성분의 질량 분율

SA; 침출 시료의 비표면적(0.0299m²/g)

t; 침출 시간(7day)

침출 실험 결과 침출액중 이온 농도 분석 결과를 나타낸

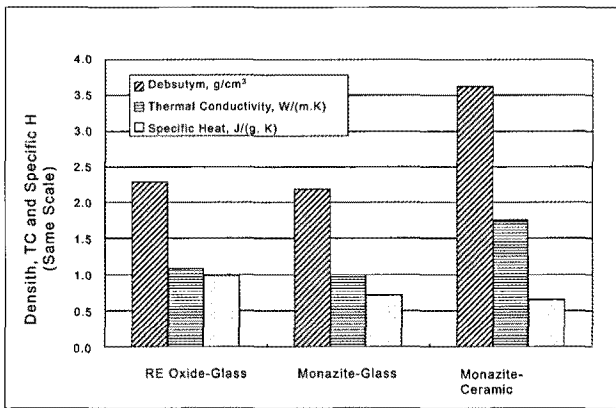


Fig. 10. Physical properties of wasteform.

표 3를 보면 ZIT 세라믹 고화체의 경우 4종의 희토류, Si 및 Ti 이온은 5ppb 이하인 분석 한계치 이하의 값을 나타내었다. 반면에 유리 매질로 구성된 고화체는 Ce 및 Nd 이온의 경우 120~550 ppb의 농도를 나타내었다. Si의 경우 유리매질 고화체는 40~50 ppm을 나타내었다. 그러므로 구성성분의 침출로 인해 고화체의 안정성에 영향을 미칠 것으로 판단된다. Ca 와 B 이온의 경우 세라믹 고화체가 상대적으로 높은 침출 농도를 나타내고 있음을 알 수 있는데 세라믹 고화체의 미반응물질로 인한 것으로 판단되며, 방사성핵종 및 Si 이온의 분석 한계 농도 이하 및 주 구성물인 Ti 및 Zn이 거의 침출이 안되는 것으로 보아 구성 매질의 변화는 없으며 고화체 건전성에도 영향을 미치지 않을 것으로 판단된다.

침출 속도를 나타낸 그림 11을 보면 희토류 원소는 유리 매질로 구성된 고화체의 경우 약 10⁻⁴ g/m²day의 침출속도를 나타내고 있는 반면, 세라믹 고화체는 분석 한계값으로부터 10⁻⁶ g/m²day 이하의 값을 나타냄으로서 내침출 특성이 매우 우수함을 알 수 있다. 총괄 이온 침출 속도는 10⁻³g/m²day로 서로 유사한 값을 나타내었다.

III. 결론

전해정련 공정에서 발생되는 폐 용융염의 재활용을 위해 분리 회수된 미 분말상의 방사성 희토류 산화물을 처분 환

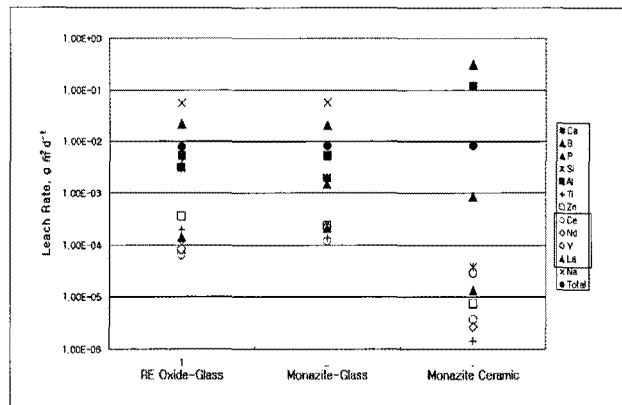


Fig. 11. Leach rate of wasteform elements according to PCT-A leach test.

Table 3. Leachate ion concentration of PCT-A leach test of RE-oxide wasteforms

분석값	unit: µg/ml											
	Ca	B	P	Si	Al	Ti	Zn	Ce	Nd	Y	La	Na
Oxide-Glass	2.9	22.6		40.6	1.9	0.17	0.34	0.12	0.31	0.019	0.07	98.34
Monazite-Glass	1	19.5	2.2	52.1	2.96	0.11	0.21	0.21	0.55	0.045	0.1	93.31
Monazite-Ceramic	172	173	0.99	<0.05	-	<0.005	0.07	<0.005	<0.005	<0.005	<0.005	

경에 적합한 고화체로 제조하기 위한 연구를 수행하였다. 본 연구에서는 발생 폐기물이 방사성 희토류 산화물로만 구성되어 있는 것으로 관련 연구가 거의 전무한 상태이다. 이러한 현재 연구 상황으로부터 고준위 폐기물의 고화체 제조에 많이 활용되는 봉산계 유리를 이용하여 용융(1200 ℃)에 의해 희토류 산화물의 고화 가능성을 평가한 결과 유리 매질의 주요 구성 성분이 희토류 산화물과 반응하여 결정질을 형성함으로써 유리 구성 항목 구조가 붕괴됨으로써 불안정한 고화체가 형성됨을 알 수 있었다. 이러한 문제점을 해결하기 위해서 방사성 핵종의 휘발이 낮으며 공정을 단순화할 수 있고 비교적 저온(1100 ℃) 조건에서 고상 반응에 의해 고화체를 제조할 수 있는 in-drum 분말 소결방법을 도출하고자 하였다. 유리 매질 자체의 문제점을 해결하기 위해서 zinc titanate를 주 성분으로 하는 ZIT 세라믹 고화 매질을 개발하여 단일 공정에 의해 1100 ℃ 저온 조건에서 안정한 ZIT 세라믹 고화체를 제조하였다.

개발된 ZIT 세라믹 고화체에 대한 수화학적 안정성 실험인 PCT-A 방법에 의한 침출 실험으로부터 방사성 희토류 산화물의 침출 농도는 분석한계치(5 ppb) 이하로 검출되지 않았으며 분석값에 의한 침출속도는 10^{-6} g/m²day 이하로서 매우 우수한 내 침출 특성을 나타내었다. 또한 고화체의 처분 환경에서 중요한 물리적 인자인 열전도도 값이 1.7 W/mK(유리 고화체; ~1.0 W/mK)로 큰 값을 나타내었다. 그리고 고화체 밀도가 3.6 g/cm³ 으로 치밀하고 안정한 고화체를 제조하였다.

감사의 글

본 연구는 교육과학기술부가 시행한 원자력 중장기 연구사업의 일환으로 수행하였습니다.

참고문헌

- [1] J. J. Laidler, J. E. Battles, W. E. Miller, J. P. Ackerman, E. L. Carls, "Development of pyroprocessing technology," Prog. Nucl. Energy, 31[1/2], pp. 131-140 (1997).
- [2] T. Koyama, T. Hijikata, T. Usami, T. Inoue, S. Kitawaki, T. Shinozaka, M. Fukusima, M. Myochin, "Integrated experiments of eletrometallurgical pyroprocessing using plutonium oxide," J. Nucl. Sci. Technol., 44[3], pp. 383-392 (2007).
- [3] Jae-Hyung Yoo, Kwon-Pyo Hong and Han-Soo Lee, "A Conceptual design study for a spent fuel pyroprocessing facility of a demonstration scale", J. of the Korean Radioactive Waste Society, 6(3), pp. 233-244, (2008).
- [4] Reference spent nuclear fuel for pyroprocessing facility design, Dong-Keun Cho, Seok-Kyun Yoon, Heui-Joo Choi, Jongwon Choi and Won-Il Ko, J. of the Korean Radioactive Waste Society, 6(3), pp. 225-232, (2008).
- [5] Y. J. Cho, H. C. Yang, H. C. Eun, E. H. Kim, I. T. Kim, "Characteristics of oxidation reaction of rare-earth chlorides for precipitation in LiCl-KCl molten salt by oxygen sparging," J. Nucl. Sci. Technol., 43[10], pp.1280-1286 (2006).
- [6] C. Lopez, X. Deschanel, J. M. Bart, J. M. Boubals, C. Den Auwer, E. Simoni, Solubility of actinide surrogates in nuclear glasses, J. of Nuc. Materials, 312, pp.76-80 (2003).
- [7] A. E. Ringwood, S. E. Kesson, N. G. Ware, W. D. Hibberson and A. Major, "The SYNROC process: A geochemical approach to nuclear waste immobilization", Geochem. J., 13[141] (1979)
- [8] A. E. Ringwood, S. E. Kesson, N. G. Ware, W. D. Hibberson and A. Major, "Immobilization of high level nuclear reactor waste in SYNROC", Nature, 278(219), (1979)
- [9] J. Campbell, C. L. Hoenig, F. Ryerson, M. Guiman, R. V. Konynenburg and R. Rozsa, "Properties of SYNROC-D nuclear wasteform: A-State-the-Art Review", UVRL-53240 (1982)
- [10] F. Poitrasson, E. Olerkers, J. Schott, and J. M. Montel, "Experimental determination of synthetic NdPO₄ monazite end-member solubility in water from 21 ℃ to 300 ℃: Imbrications of rare earth element mobility in crustal fluids", Geochemica et Cosmochimica Acta, 40[10], pp. 2207-2221 (2004).
- [11] L. Bois, M.J.Guittet, F. Carrot, P. Trocellier, M. Gautier-Soyer, " Preliminary results on the leaching process of phosphate ceramics potential hosts for actinide immobilization", J. Nuc.

Materials, 297, pp. 129–137 (2001)

- [12] B. Damien, A. Fabienne, C. Thibault, S. Dimitri, and B. A. Didier, "Solid-state synthesis of monazite -type compounds LnPO_4 (Ln=La to Gd)", *Solid State Science*, 9, pp.432–439 (2007).
- [13] ASTM C 1285–94, Standard Test Methods for Determining Chemical Durability of Nuclear Waste Glasses: The Product Consistency Test (PCT)," *Annual Book of ASTM Standards*, American Society for Testing and Materials, West Conshohoken, PA, (1995).