

환원분위기하 석탄회 세슘 반응생성물의 열적 안정성

신진명 · 김광렬* · 박장진 · 신설우

한국원자력연구소 고방사성핵물질 처리기술개발

* 충북대학교 공과대학 환경공학과

Thermal Stability of Cesium Reacted with Fly Ash in Hydrogen Atmosphere

Jin-Myeong Shin · Kwang-Ryul Kim* · Jang-Jin Park · Seol-Woo Shin

Dept. of DUPIC Facility and Process Waste Management, KAERI, Taejon, Korea

*Dept. of Environmental Eng, Chungbuk National Univ., Cheongju, Chungbuk, Korea

Abstract

This study has been investigated to analyze the thermal stability of cesium reacted with fly ash with changing mole ratio of Cs/Al in hydrogen atmosphere. When the $CsNO_3$ and fly ash were reacted at $1000^\circ C$ in hydrogen atmosphere, cesium nepheline($CsAlSiO_4$) phase began to emerge in addition to pollucite($CsAlSi_2O_6$) phase when the cesium loading quantity was greater than $0.32(g-Cs_2O/g-fly\ ash)$. Cesium nepheline($CsAlSiO_4$) phase increased with increasing cesium loading quantity. When cesium trapped on a fly ash was exposed to $1200^\circ C$ in hydrogen atmosphere, no weight loss due to the volatilization was shown until the cesium loading quantity was reached at $0.32(g-Cs_2O/g-fly\ ash)$. In the case of the cesium loading quantity of $0.48\sim 0.74(g-Cs_2O/g-fly\ ash)$ in hydrogen atmosphere, the weight loss increased with increasing the cesium loading quantity. This is considered to be due to the cesium nepheline($CsAlSiO_4$) whose vapor pressure is higher than that of pollucite($CsAlSi_2O_6$).

Key words : fly ash, cesium, pollucite, cesium-nepheline, thermal stability

I. 서 론

DUPIC 핵연료제조공정은 사용후 경수로핵연료의 탈피복, 산화·환원 및 소결과정을 거치게 된다. 산화·환원과정에서는 탈피복된 사용후핵연료 분말의 소결성을 향상시키기 위하여 산화분위기 및 환원분위기에서 각각 약 $450^\circ C$ 및 $700^\circ C$ 로 처리하게 되며 산화·환원과정을 3회 반복한다. 소결

과정은 제조된 압분체를 고밀화시켜 단위체적당 가능한 많은 양의 핵분열성물질이 포함된 소결체를 제조하기 위하여 수소분위기 $1700^\circ C$ 하에서 수행된다¹⁾. 한편 DUPIC 핵연료제조공정 중 산화·환원 및 소결과정에서는 휘발성 핵분열 가스(tritium, carbon-14, krypton, xenon, iodine etc.) 및 준휘발성 핵분열 가스(cesium, ruthenium etc.) 들이 발생하게 된다. 준휘발성 핵분열 가스 중 세슘은 방사

선적 위해도가 크며 침출성이 큰 핵종 중의 하나로서 산화·환원공정(OREOX) 및 소결공정 중에 기체상 세습화합물들이 고온에서 생성되는데, 이들은 배기체 처리장치를 통해서 안전하게 처리해야만 한다.

세습은 자연계에 널리 분포하는데, 그 양은 극히 적으며, 다른 알칼리금속과 함께 나타난다. 세습광물로는 pollucite($CsAlSi_2O_6$), Rhodizite ((K, Cs)Be₄Al₄(B, Be)₁₂O₂₈, Potassium Cesium Beryllium Aluminum Borate) 등이나, 홍운모·녹주석·칼륨의 자원인 카널라이트 등에도 함유되어 있다. Pollucite($CsAlSi_2O_6$)는 수화된 세습알루미늄규산염으로서 $2Cs_2O \cdot 2Al_2O_3 \cdot 9SiO_2 \cdot H_2O$ 의 조성을 가지며, Rhodizite는 알루미늄, 베릴륨, 나트륨과 세습의 수화된 붕산염이다²⁾.

일반적으로 알칼리금속들은 Hume-Rothery 법칙에 근거하여 고용체를 형성하기가 어려울 것으로 예상된다. Hume-Rothery 법칙은 두 금속간의 고용체(solid solution)는 그들 간의 원자 직경(atomic diameter)이 15% 보다 적은 차이를 나타내고, 큰 전지 화학적인 인자에 의한 화합물 형성 가능성이 거의 없을 때에만 가능한 것으로 예측된다. 또 낮은 원자수를 가진 금속은 높은 원자수를 가진 금속에 보다 쉽게 용해된다고 예측하였다. 이에 따르면, 보다 큰 질량을 갖는 알칼리금속이 보다 큰 원자 직경을 갖게 되고 모든 원소들 중에서 가장 양전하를 잘 띄기 때문에 고용체가 형성되지 않는다.

세습화합물 중 열적으로 안정한 형태로서 세습알루미늄규산염(cesium aluminosilicates)등을 들 수 있다. 현재까지, 세습의 고정화 물질로 aluminosilicates($CsAlSiO_4$, $CsAlSi_2O_6$ (pollucite), $CsAlSi_5O_{12}$, phosphate($CsZr_2(PO_4)_3$), titanates(Cs doped $BaAl_2Ti_6O_{16}$, $CsTiSi_2O_6$, $Cs_xAl_xTi_{8-x}O_{16}$), pyrolytic-carbon coated zeolite)등이 제안되어 왔다³⁻¹⁴⁾. 이들 중에서 pollucite($CsAlSi_2O_6$)가 열역학적 안정성, 처분시 높은 침출저항, 제조성 및 높은 세습 함유량 때문에 가장 추천시 되고 있다⁵⁻¹⁰⁾.

박 등¹⁵⁾은 세습의 고정화재료인 cesium aluminosilicates 상의 원료물질로서 석탄 화력발전소 부산물인 석탄회를 이용하여 이의 산화분위기에서의

합성실험 및 생성물의 특성 분석을 수행하여 기체상 세습의 포집가능성을 확인한 바 있다. 그러나 석탄회가 DUPIC 핵연료제조공정 중 산화·환원으로 및 소결로의 배기체 처리장치에 이용되기 위해서는 환원분위기하에서 세습을 포집하여야 하며 또한 열적으로 안정한 형태의 세습화합물을 형성하여야 한다.

그리고 약 1000°C 이상의 고온 환원분위기하에서 장시간 조업이 예상되므로 화재 등 사고시를 대비하여 반응한 세습의 재취발 등 세습의 고온 안정성에 대한 예비 검토가 필요하다.

따라서 환원분위기에서 석탄회와 반응되는 세습의 적정 반응량 실험 및 1200°C의 고온 조건에서 세습이 포집된 반응생성물의 열적 안정성 실험을 수행하였다. 이를 위해 Cs/Al 몰 비의 변화에 따라 제조한 세습 반응생성물의 특성을 머플로에서 열처리, XRD, XRF 및 SEM 분석 등으로 분석하였다.

II. 실험재료 및 방법

본 실험에 사용한 기체상 세습의 공급원으로 사용한 $CsNO_3$ 는 Aldrich사 제품으로서 순도는 99.9% 이었고 이의 물리·화학적 특성을 Table 1에 나타내었다. 석탄회는 보령 화력발전소에서 채취한 것을 사용하였으며 이의 화학적 조성을 Table 2에 나타내었다. Table 2에서 보는 바와 같이 석탄회는 알루미늄과 실리카 성분을 87wt% 이상 함유하고 있을 뿐만 아니라 Si/Al 몰비가 약 2.1로서 pollu-

Table 1. Physical and chemical properties of $CsNO_3$

Property	$CsNO_3$
Molecular weight	194.92
Melting point, °C	414
Boiling point,	-
Density, kg/m ³	3660
ΔH_f , kcal/mole	-118.11
Normal decomposition temp.	584

Table 2. Chemical composition of fly ash

Constituents	wt.%
SiO ₂	62.04
Al ₂ O ₃	25.02
Fe ₂ O ₃	5.88
CaO	1.39
MgO	0.68
Na ₂ O	0.36
K ₂ O	2.10
TiO ₂	0.09
Others	2.44
Total	100

cite (CsAlSi₂O₆) 형성에 가장 이상적인 값 2.0에 매우 근접하고 있다. 석탄회 중 미연탄소분이 2.4% 정도 함유되어 있어, 고온안정성 분석 시 무게감량에 미치는 영향을 미리 배제하고자 700℃에서 12시간 산화시켜 실험에 이용하였다.

III. 결과 및 고찰

1. 세습의 몰 비 변화에 따른 석탄회의 반응성

Table 3은 환원분위기에서 Cs/Al 몰 비의 변화에 따른 세습의 반응률을 나타내고 있다. 석탄회와 CsNO₃를 혼합 후 열처리하여 cesium aluminosilicate를 합성하는 과정에서 질산세습으로부터 분해된 Cs₂O가 석탄회 중의 aluminosilicate 성분과 반응하여 cesium aluminosilicate를 형성하는데 이용되었는지 또는 석탄회와 미 반응된 Cs₂O 혹은 CsNO₃ 자체로 휘발하여 초기 세습 첨가량보다 적어지는 현상이 Table 3에 나타나고 있다. 특히 Cs/Al의 몰 비가 1이하인 범위에서는 대부분의 Cs이 aluminosilicate 형성에 참여하지만 그 보다 많은 양의 Cs이 첨가 될 때는 석탄회 중의 알루미늄 실리케이트 성분과 반응 자리가 없는 미 반응 Cs이 휘발된 사실을 Table 3에서 확인하였다. 이와

같이 몰 비가 이론치 이상으로 커질 때에는 물론 그보다 낮은 양으로 Cs이 첨가되었을 때도 Cs은 cesium aluminosilicate가 아닌 산화물 형태로 휘발한 것으로 해석된다.

따라서 석탄회와 세습간의 반응률은 Cs/Al 몰 비의 변화에 지배적인 영향을 받는 것으로 해석된다. 따라서 석탄회 분말, 혹은 이를 펠렛 및 필터 형태로 가공하여 포집실험을 수행시 적정 세습 반응량 조절이 있어야만 한다.

환원분위기하에서 Cs/Al 몰 비를 0.1~1.5로 변화시킨 석탄회와 CsNO₃의 혼합물을 1000℃에서 1시간 반응시킨 후 형성된 반응생성물들의 구조를 X-선 회절 분석한 결과, Table 4에서 보는 바와 같이 pollucite(CsAlSi₂O₆)와 cesium nepheline(CsAlSiO₄) 상으로 나타났다. 따라서 위의 반응식에 나타나 있는 것처럼 pollucite (CsAlSi₂O₆)와 cesium nepheline (CsAlSiO₄)의 경우 모두, 석탄회가 세습과 반응할 수 있는 이론적인 최대량은 Al과 몰 비로 1:1인 경우로서 석탄회는 세습과 반응하여 pollucite (CsAlSi₂O₆)와 cesium nepheline (CsAlSiO₄)을 100% 생성할 수 있는 가능성을 가지고 있어 세습의 최대 반응생성량을 추정할 수 있다. 또한 반응생성물 중의 미 반응 세습산화물 또는 CsNO₃의 존재를 X-선 회절분석으로 살펴보았으나 확인할 수 없었다. 따라서 Cs/Al의 몰 비가 1 이상일 때는 과량의 세습이 석탄회 중의 alumi-

Table 3. Reaction rate of cesium on the change of Cs/Al mole ratio in hydrogen atmosphere

Mole ratio (Cs/Al)	Initial Cs ₂ O (g-Cs ₂ O/g-fly ash)-A	Reacted Cs ₂ O (g-Cs ₂ O/g-fly ash)-B	Reaction rate (%) [B/A×100]
0.1	0.0691	0.07	100
0.25	0.173	0.17	95
0.5	0.346	0.32	92
0.75	0.518	0.48	92
1.0	0.691	0.63	91
1.25	0.864	0.70	81
1.5	1.037	0.74	71

Table 4. Phase analysis results with changing the mole ratio of Cs to Al before and after desorption tests in hydrogen atmosphere

Mole ratio (Cs/Al)	Cesium loading quantity (g-Cs ₂ O/g-fly ash)	Phase	
		Before desorption	After desorption
0.1	0.07	Pollucite, Quartz, Mullite*, Cristobalite	Pollucite, Mullite, Cristobalite
0.25	0.17	Pollucite, Quartz*, Mullite*, Cristobalite*	Pollucite, Mullite*, Cristobalite*
0.5	0.32	Pollucite, Quartz*, Mullite*, Cristobalite*	Pollucite, Quartz*, Mullite*, Cristobalite*
0.75	0.48	Pollucite, Mullite*, Cristobalite*, Cesium nepheline	Pollucite, Mullite*, Cristobalite*, Cesium epheline
1.0	0.63	Pollucite, Mullite*, Cristobalite*, Cesium nepheline	Pollucite, Mullite*, Cristobalite*, Cesium nepheline
1.25	0.70	Pollucite, Mullite*, Cristobalite*, Cesium nepheline	Pollucite, Mullite*, Cristobalite*, Cesium nepheline
1.5	0.74	Pollucite, Mullite*, Cristobalite*, Cesium nepheline	Pollucite, Mullite*, Cristobalite*, Cesium nepheline

nosilicate와 반응할 자리가 없어 미 반응된 세슘산화물로 존재하다 휘발된 것으로 판단된다.

환원분위기하 Cs/Al 몰 비가 0.5인 석탄회와 CsNO₃의 혼합물을 1000℃에서 1시간 반응시킨 후 형성된 반응생성물의 X-선 형광분석 결과는 Table 5에 나타난 바와 같이, 석탄회와 반응한 세슘 화합물의 형태는 Cs₂O이고 세슘산화물이 28% 함유되어 있다. 이 반응생성물을 구조적 변화를 명확히 규명하기 위해 X-선 회절 분석한 결과 Fig. 1에 나타났듯이 석탄회의 주 구성물질인 quartz(SiO₂)와 mul-

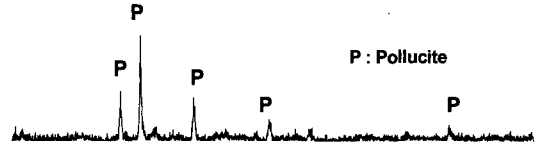
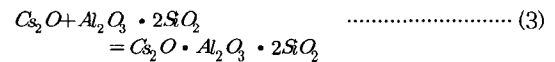
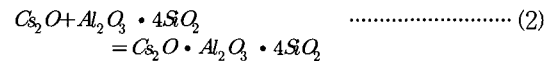
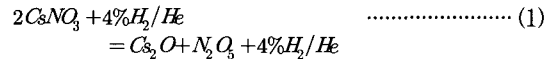


Fig. 1. X-ray diffraction pattern for the reaction product of fly ash and CsNO₃ at 1000℃ in hydrogen atmosphere.

lite(3Al₂O₃ · 2SiO₂) 피크는 소멸되고 새로운 반응생성물 즉, pollucite(CsAlSi₂O₆) 피크가 나타났다. 이로써 환원분위기에서 석탄회 중의 aluminosilicate 성분과 기체상 세슘산화물이 화학적 반응에 의해 흡착이 진행되어 pollucite(CsAlSi₂O₆)라는 새로운 화합물이 형성되었음을 확인하였다.

이상의 결과로서, 환원분위기하 석탄회와 CsNO₃의 화학 반응식은 다음과 같이 표현될 수 있다.



식 (2) 및 (3)을 살펴보면 pollucite(CsAlSi₂O₆)가 생성되든지 혹은 cesium nepheline(CsAlSiO₄)이 생성되든지 간에 aluminosilicate의 무게 증가는 Cs₂O 형태임을 알 수 있고 기체상 세슘산화물과 석탄회 중의 알루미늄노실리케이트 성분이 반응하여 pollucite (CsAlSi₂O₆) 혹은 cesium nepheline (CsAlSiO₄)을 형성하는 것이다.

Table 5. XRF result of the reaction product formed by the reaction of CsNO₃ and fly ash in hydrogen atmosphere

Component	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Cs ₂ O	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	Others
wt.%	39.5	23.3	28.0	5.2	2.0	1.0	1.0

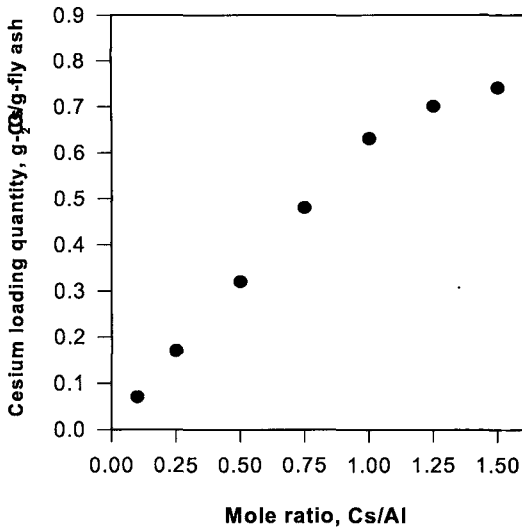


Fig. 2. Change in amount of cesium reaction products of fly ash with changing mole ratio of Cs to Al in hydrogen atmosphere.

환원분위기하 Cs/Al 몰 비의 변화에 따른 세슘 반응생성량의 변화를 Fig. 2에 나타내었는데 Cs/Al 몰 비가 증가할수록 세슘 반응생성량이 증가하였고 Cs/Al 몰 비가 1일 경우 석탄회 그램당 약 0.63 그램의 Cs₂O와 반응하였다.

2. 세슘 반응생성량에 따른 상변화

Fig. 3에 세슘 반응생성량 0.07, 0.32, 0.48, 0.74(g-Cs₂O/g-fly ash)일 때의 X-선 회절분석 패턴을 나타냈다. Fig. 3에서 보는 것처럼 세슘 포집량이 0.07(g-Cs₂O/g-fly ash)일 때는 quartz (SiO₂), mullite (3Al₂O₃ · 2SiO₂), pollucite (CsAlSi₂O₆) 상이 나타났다. 세슘 포집량 0.32 (g-Cs₂O/g-fly ash)에서는 pollucite (CsAlSi₂O₆) 상만 나타났다. 한편, 세슘 포집량이 0.48(g-Cs₂O/g-fly ash)에서는 pollucite (CsAlSi₂O₆) 상외에 cesium nepheline (CsAlSiO₄) 상이 나타나기 시작하여 세슘 포집량이 0.74 (g-Cs₂O/g-fly ash)에서는 cesium nepheline (CsAlSiO₄)상이 더 발달하였다.

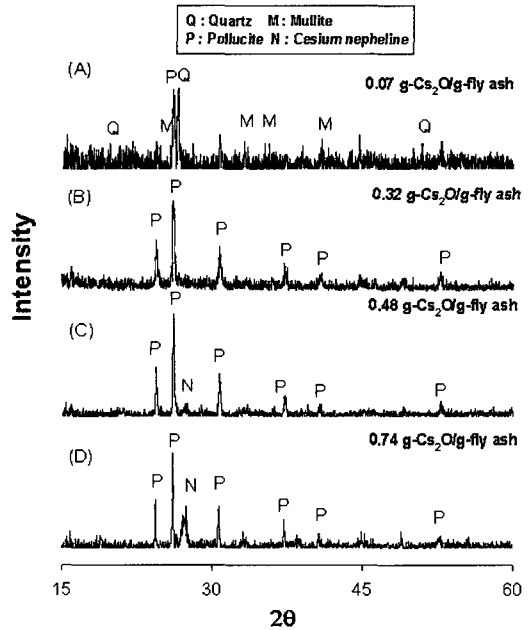


Fig. 3. X-ray diffraction patterns of cesium reaction products of fly ash having different cesium loading quantity in hydrogen atmosphere.

3. 세슘 포집량 변화에 따른 세슘 휘발량 변화

세슘이 포집된 반응생성물을 환원분위기에서 1200℃에서 6시간 동안 유지하여 세슘의 휘발에 의한 무게 감소를 Fig. 4에 나타내었다. 세슘 포집량이 0.32(g-Cs₂O/g-fly ash)까지는 세슘휘발에 의한 무게감소가 없었지만 0.48(g-Cs₂O/g-fly ash)에서는 2.3%, 0.70(g-Cs₂O/g-fly ash)에서는 14.8%로 증가하는 경향을 나타내었다. 그러나 0.74 (g-Cs₂O/ g-fly ash)에서는 14.9%로 완만해지는 경향을 나타내었다.

일반적으로 세슘 포집량이 증가할수록 세슘의 휘발에 의한 무게 감소가 단조적으로 증가하리라 생각할 수 있으나, Fig. 4에 나타난 바와 같이, 세슘 포집량이 약 0.32(g-Cs₂O/g-fly ash) 이상에서만 세슘 포집량이 증가할수록 무게 감소가 증가하였다.

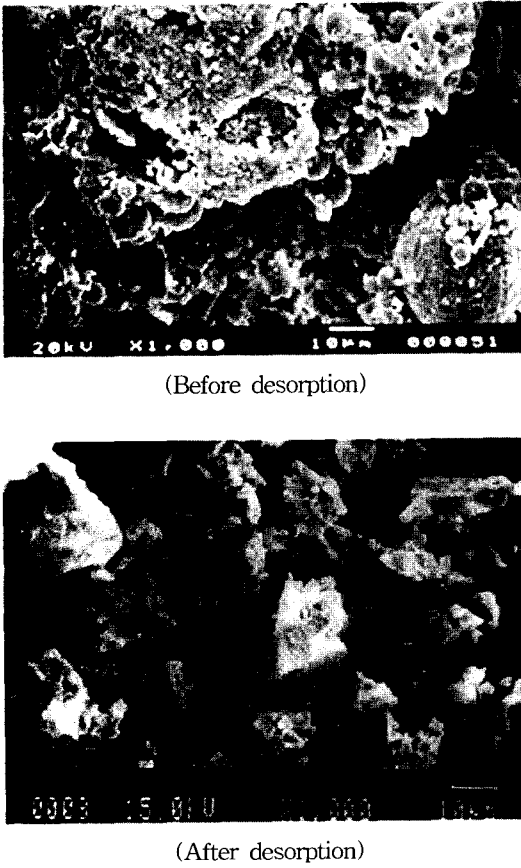


Fig. 5. SEM images before and after desorption tests in hydrogen atmosphere.

Knudsen cell에서 수행한 Hilpert 등¹⁶⁾의 연구 결과 1200℃에서 CsAlSiO₄의 세습증기압이 pollucite(CsAlSi₂O₆)의 세습증기압보다 약 50배 정도 크고, Gallagher와 McCarthy¹⁷⁾의 연구 결과 1200℃에서 24시간 유지하였을 때 CsAlSiO₄의 무게감량이 pollucite(CsAlSi₂O₆)의 무게감량보다 약 26배 크다는 사실이 pollucite (CsAlSi₂O₆)가 cesium nepheline (CsAlSiO₄)에 비해 상당히 열적으로 안정하다는 것을 의미한다. 따라서, 석탄회 세습 반응생성물의 고온 무게감량은 증기압이 큰 CsAlSiO₄에 의한 무게감량이 지배적이라고 해석된다.

4. 탈착전 · 후의 SEM 관찰

석탄회 세습 반응생성량이 0.32(g-Cs₂O/g-fly

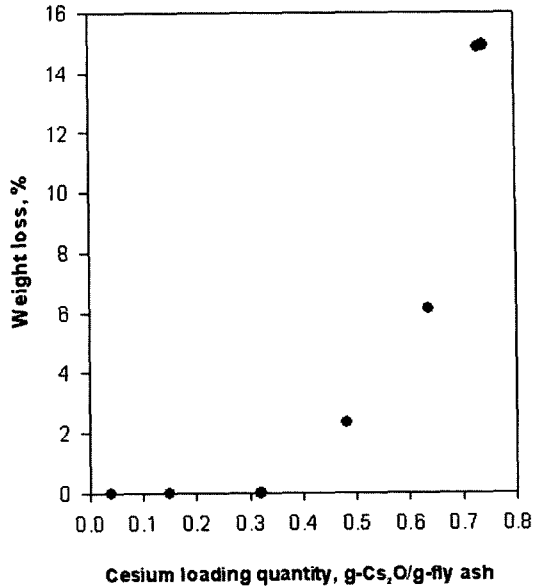


Fig. 4. Effect of the amount of cesium loading quantity of fly ash on weight loss of sample hold at 1200℃ for 6 hours in hydrogen atmosphere.

ash)인 시료에 대하여 탈착 전·후 형상의 변화를 SEM으로 관찰한 결과를 Fig. 5에 나타내었다. 석탄회와 CsNO₃의 반응 생성물은 Fig. 5에 나타난 바와 같이 탈착 전의 시료는 구형의 형상과 덩어리 형태로 전체적으로 분포 되어있다. 또한 계의 등딱지 모양 같이 생긴 작고 bulky한 crystal 형태의 pollucite (CsAlSi₂O₆)형상을 보였다. 이는 산화분위기에서 포집된 석탄회 세습 반응생성물과 비슷한 형상을 보였다¹⁵⁾. 또한 탈착 후의 시료는 석탄회가 아주 거친 표면으로 소결되어 전체적으로 분포 되어 있음을 관찰 할 수 있었고 일부 표면이 거칠고 bulky한 crystal 형태를 일부 보였다. 탈착 전·후의 시료가 일부 다른 형상을 보인 이유는 반응온도 변화에 따른 소결성 영향인 것으로 판단 된다.

IV. 결 론

환원분위기에서 석탄회와 반응되는 세습의 적정 반응량 실험 및 1200℃의 고온 조건에서 세습이 포집된 반응생성물의 열적 안정성 실험을 수행하

였다. 이를 위해 Cs/Al 몰 비의 변화에 따라 제조한 세슘 반응생성물의 특성을 머플로에서 열처리, XRD, XRF 및 SEM 분석 등으로 분석한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 환원분위기하 석탄회와 CsNO₃의 반응생성물을 XRD로 상 분석한 결과 pollucite(CsAlSi₂O₆)와 cesium nepheline(CsAlSiO₄) 상으로 나타났다.
2. 환원분위기하 세슘 반응생성량이 0.48(g-Cs₂O/g-fly ash) 이상일 때는 pollucite(CsAlSi₂O₆)상 이외에 CsAlSiO₄상이 나타나기 시작하였으며, 세슘 반응생성량이 증가할수록 CsAlSiO₄ 상이 발달하였다.
3. 환원분위기하 세슘 반응생성량이 0.32(g-Cs₂O/g-fly ash)까지는 세슘의 휘발로 인한 무게감량은 없었고, 0.48(g-Cs₂O/g-fly ash) 부터는 세슘 반응생성량이 증가할수록 무게감량이 증가하였다. 이는 pollucite(CsAlSi₂O₆) 보다 증기압이 큰 CsAlSiO₄상 때문인 것으로 사료된다.

따라서 석탄회와 세슘간의 반응물은 Cs/Al 몰 비의 변화에 지배적인 영향을 받는 것으로 해석된다. 따라서 석탄회 분말, 혹은 이를 펠렛 및 필터 형태로 가공하여 포집실험을 수행시 적정 세슘 반응량 조절이 있어야 한다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

1. 이정원등 : 경중수로 연계 핵연료 주기 기술 개발, KAERI/RR-2234/2001, 한국원자력연구소, 대전, 47-54, 2001.
2. Hart, W. A., Beumel, Jr, O. F. and Whaley, T. P. : The Chemistry of Lithium, Sodium, Potassium, Rubidium, Cesium and Francium, Pergamon Press, 1973.
3. Gallagher, S. A., McCarty, G. J. and Smith, D.K. : Preparation and X-ray Characterization of CsAlSiO₄, Materials Research Bulletin, Vol. 12, 1183-1190, 1977.
4. Mukerji, J. and Kayal, P. B. : Reaction of CsNO₃ and RbNO₃ with SiO₂ and Metakaolin, Journal of American Ceramic Society, Vol. 57, 229-230, 1974.
5. Cerny, P. : Pollucite and Its Alternation in Geological Occurrences in Deep Burial Radioactive Waste Disposal, McCarthy, G.J. ed., Vol. 1, 231-236, 1979.
6. Gallagher, S. A., and McCarty, G. J. : Preparation and X-ray Characterization of Pollucite(CsAlSi₂O₆), Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry, Vol. 43, 1773-1777, 1981.
7. Vance, E. R., Scheetz, M. W., Barnes, M. W. and Bodnar, B. J. : Studies of Pollucite, Topp, S. V. ed., Vol. 6, 31-35, 1982.
8. Mazza, D. and Lucco-Borlera, M. : On the Substitution of Fe and B for Al in the Pollucite(CsAlSi₂O₆) Structure, Journal of the European Ceramic Society, Vol. 17, 1767-1772, 1983.
9. Teertstra, D. K. and Cerny, P. : The Compositional Evolution of Pollucite from African Granitic Pegmatites, Journal of African Earth Sciences, Vol. 25, No. 2, 317-331, 1997.
10. Adl, T. and Vance, E. R. : CsAlSi₅O₁₂ : A Possible Host for ¹³⁷Cs Immobilization, Journal of Materials Science, Vol. 17, 849-855, 1982.
11. Vance, E. R. and Ahmad, F. J. : Dissolution Studies of CsAlSi₅O₁₂, Nuclear and Chemical Waste Management, Vol. 4, 171-176, 1983.
12. Roy, R., Vance, E. R. and Alamo, J. : [NZP], A New Radiophase for Ceramic Nuclear Waste Forms, Mat. Res. Bull., Vol. 17, No. 6, 585-589, 1982.
13. Scheetz, B. E., Agrawal, D. K., Breval, E. and Roy, R. : Sodium Zirconium Phosphate (NZP) as a Host Structure for Nuclear Waste

- Immobilization: A Review, Waste Management, Vol. 14, No. 6, 489-505, 1994.
14. Balmer, M. L., Huang, Q., Wong-Ng, W., Roth, R. S. and Santoro, A.: Neutron and X-ray Diffraction Study of the Crystal Structure of $\text{CsTiSi}_2\text{O}_6$, Journal of Solid State Chemistry, Vol. 130, No. 1, 97-102, 1997.
 15. Park, J. J., Chun, K. S., Shin, J. M., Kim, Y. K. and Park, H. S. : A Study on the Utilization of Fly Ash as a Trapping Material of Gaseous Cesium (I) Trapping Characteristics of Gaseous Cesium by a Thermal Analyzer, J. of Korean Solid Wastes Engineering Society, 13, 637-643, 1996.
 16. Hilpert, K., Odoj, R. and Nurnburg, H. W. : Mass Spectrometric Study of the Potential of $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ Additives for the Retention of Cesium in Coated Particles, Nuclear Technology, Vol. 61, 71-77, 1983.
 17. S. A. Gallagher and G. J. McCarty : High Temperature Thermal Stability of CsAlSiO_4 and $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$, Materials Research Bulletin, Vol. 17, 89-94, 1982.