

## LiCl염 폐기물내 존재하는 I/II족 핵종분리 방법

조용준, 양희철, 은희철, 김응호, 김인태  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지  
[choyj@kaeri.re.kr](mailto:choyj@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

사용 후 산화물핵연료의 전해환원 공정에서는 Cs 및 Sr과 같은 1/2족 핵종을 포함하고 있는 LiCl염 폐기물이 발생하게 된다. 발생하는 LiCl 염 폐기물을 Zeolite를 이용하여 blending 한 후 glass frit를 첨가하고 고화체를 처리하는 기술이 미국의 ANL에 의해 개발되었으나 이 방법은 초기 염 폐기물 무게 대비 10배 이상의 무게증가가 발생하기 때문에 실제 공정에 적용할 경우에는 최종 발생하게 되는 폐기물에 의한 부담이 커지게 된다. 이러한 문제점을 해결하기 위해서는 LiCl 내에 존재하는 I/II족 핵종을 분리하여 분리된 핵종만 고화처리하고 핵종이 제거된 LiCl염은 전해환원 공정에 재활용하는 기술이 사용될 수 있는데 본 연구에서는 LiCl 용융염내 존재하는 Cs 및 Sr의 제거를 위한 여러 가지의 침전제 첨가방법에 대한 분리가능성 검증에 대한 실험적 검증을 수행하였다.

### 2. 실험 및 결과

LiCl 염내 포함되어 있는 Cs 및 Sr의 제거를 위하여 carbonate, phosphate, sulfate 첨가방법 그리고 혼합가스(O<sub>2</sub>(50%)+CO<sub>2</sub>(50%)) 분산법들에 대한 효율검증 실험을 수행하였다.

#### 2.1. carbonate 첨가방법

Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>를 첨가하여 LiCl 염내 포함되어 있는 Sr에 대한 탄산화반응 특성을 파악하였다. 실험은 650°C의 일정한 용융염온도에서 수행되었고 Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>의 첨가량은 포함되는 Sr에 대하여 1~5 몰비로 변화시켜가며 실험을 수행하였다. Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>와의 반응으로 Sr은 탄산화물 형태로 침전되었으며 (Fig. 1) 첨가 몰비가 3 이상의 조건에서 99% 이상의 탄산화효율을 나타내었다.

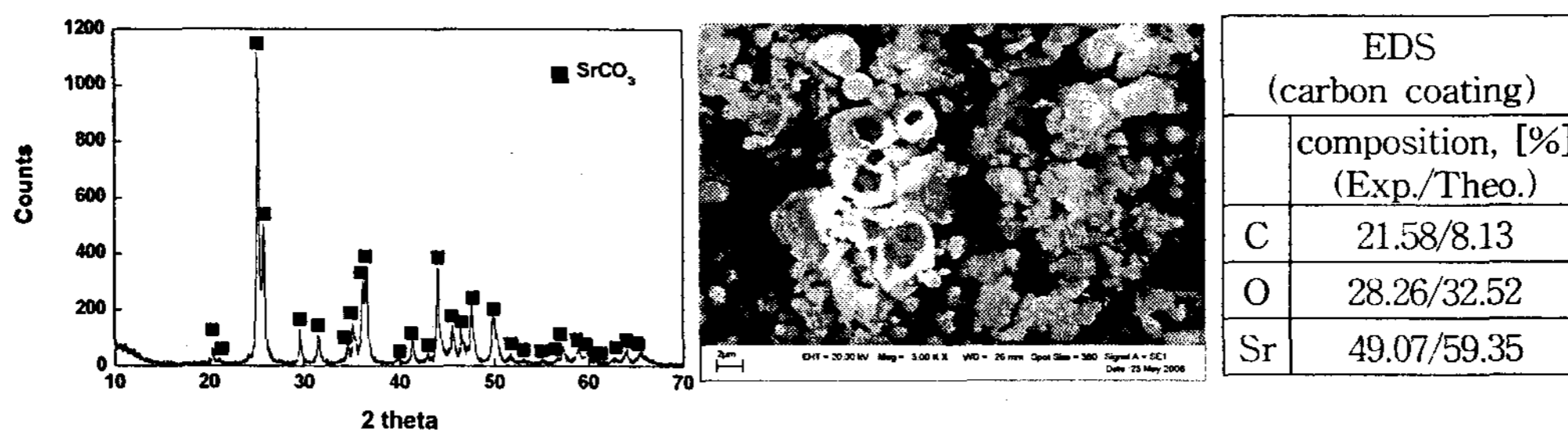


Fig 1. XRD pattern and SEM-EDS result of Sr carbonate by reaction with Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>

#### 2.2. phosphate 첨가방법

Li<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> 첨가에 의한 LiCl 용융염내 존재하는 Cs 및 Sr의 인화반응 특성에 대한 실험은 650°C 및 750°C의 온도에서 투입몰비를 0.5~2까지 변화시키면서 수행하였다. 반응효율은 온도에 따른 영향을 볼 수 없었으며 Cs의 경우에는 750°C, 2 투입 몰비의 조건에서 최대 30.7%, Sr의 경우에는 41%의 반응효율을 나타내었다.

#### 2.3. 혼합가스 분산방법

50%의 산소와 50%의 이산화탄소로 혼합되어 있는 혼합가스를 Sr을 포함하고 있는 LiCl 용융염

내로 분산시켜 Sr의 탄산화반응 특성을 파악하였다. 실험결과 생성되는 물질은 SrCO<sub>3</sub> 이었으며 반응효율은 일정한 분산형태 및 시간조건에서 온도가 증가함에 따라서 증가하였으며 혼합가스의 분산 형태에 크게 영향을 받음을 알 수 있었다. 다공성의 helical 형태의 분산관을 사용하였을 경우 650°C, 2 L/min의 분산유속 및 7시간의 분산시간에서 73.2%의 Sr에 대한 탄산화 효율을 실험적으로 얻을 수 있었다.

2.4. sulfate 첨가방법

Li<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 첨가에 의한 Cs 및 Sr의 황화물화 반응 특성에 대한 실험을 650°C~750°C의 온도범위와 1~2 첨가 몰비의 조건에서 수행하였다. 황화물화 반응이 종결된 후 각각의 반응효율 측정을 위해서는 ICP 및 AA를 이용하여 분석하여야 하는데 반응 후 생성된 Cs 및 Sr 황화물은 모두 물에 대한 용해도가 크므로 전환율에 대한 분석이 불가능하다. 따라서 본 연구에서는 생성된 Cs 및 Sr 황화물의 농도를 측정하기 위하여 초기 시료를 알콜에 용해한 후 침전물과 분리하여 각각 효율을 측정하는 방법을 사용하였다. Fig. 2에 이러한 분석을 위한 공정을 순차적으로 나타내었다.

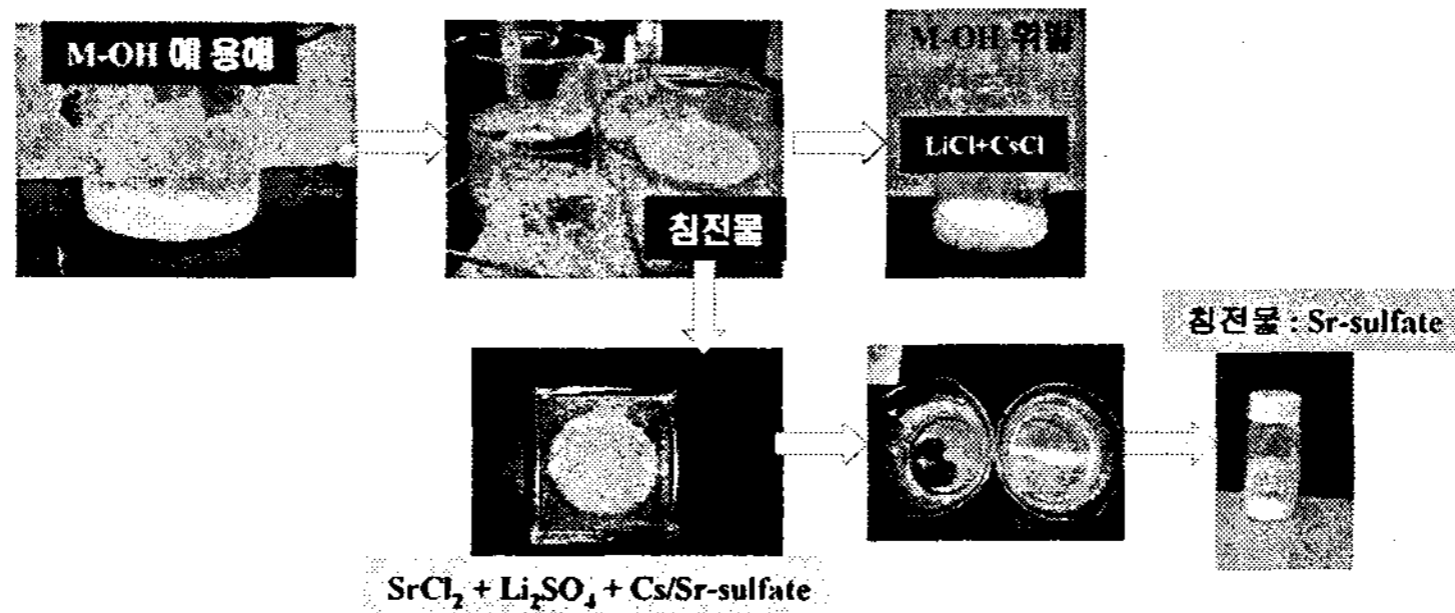


Fig. 2. Explain about Salt treatment for detection of conversion

실험결과 Li<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>와의 반응으로 Cs의 경우는 Cs<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>6</sub>의 형태로 Sr의 경우에는 SrSO<sub>4</sub> 형태로 반응이 발생한다는 것을 알 수 있었으며 반응하지 않고 남아있는 과잉의 Li<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>로 염내 존재한다는 것을 알 수 있었다. Fig. 3에 Cs 및 Sr의 황화물에 대한 XRD 및 SEM 분석결과를 나타내었다. 최대 전환효율은 Cs의 경우는 78.9%, Sr의 경우는 97% 이상을 나타내었다.

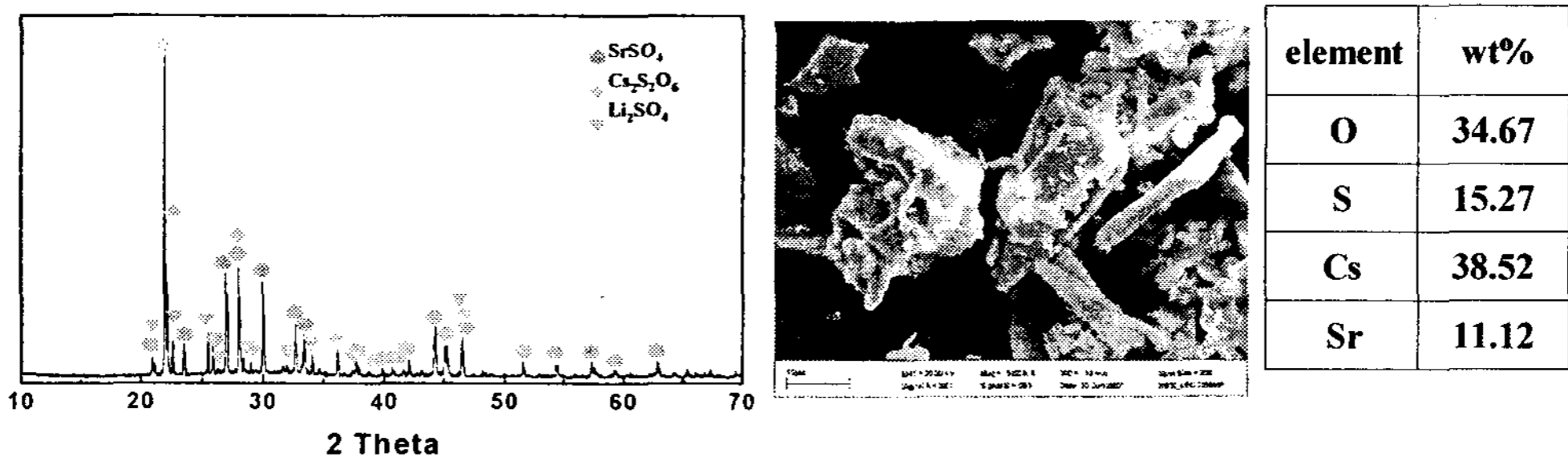


Fig 31. XRD pattern and SEM-EDS result of Cs/Sr sulfate by reaction with Li<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>

3. 결론

LiCl염내 존재하는 I/II족 핵종제거를 위해 여러 가지 침전제(carbonate, phosphate, sulfate) 첨가방법과 혼합가스 분산방법을 이용하여 실험을 수행한 결과 sulfate 첨가 방법이 가장 좋은 전환율을 나타내었다. 현재 이에 대한 연구가 계속적으로 이루어지고 있으며 앞으로 반응결과 생성된 Cs 및 Sr sulfate와 LiCl염을 분리하기 위한 연구가 계속적으로 수행될 예정이다.