

탄산용액 계를 사용하는 산화용해-침전 조합 기술에 의한 SF로부터 U의 분리 공정에서 탄산염의 전해적 회수/순환 기술 개발

김광욱, 김연화, 김성민, 임재관, 이일희

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)

nkwkim@kaeri.re.kr

1. 개요

최근에 종래의 SF 용해와는 다르게 상온 탄산염 계를 사용하여 SF의 산화 용해가 가능함을 제시하고 이후 용매추출법이 아닌 침전법을 사용하여 Pu은 단독으로 분리가 되지 않으면서 U과 TRU 핵종을 FP 핵종으로부터 고순도 분리에 대한 가능성에 관한 연구가 제시되고 있고 있으며 [1], 2003년 미국 LANL도 AFCI comparison 보고서에서는 냉각 결정화에 의한 침전법을 사용하는 습식 공정이 핵확산 저항성 및 폐기물 발생 측면에서 다른 용매추출을 사용하는 습식 공정에 비하여 높은 장점이 있음을 보고하였다. 본 연구실에서는 Fig.1에서와 같이 높은 알카리 탄산염 매질에서의 SF 용해 및 침전 기술의 조합을 사용하여, SF의 대부분을 차지하는 U만을 선택적으로 분리하여 C-class화합으로써, 고준위 폐기물 처분장 능을 증대시킬 수 있고, 핵확산저항성과 친환경적성을 동시에 가지는 한국 실정에 적합한 습식공정 개발의 가능성을 제시하였다. 여기에서는 높은 pH 탄산 용액계에서 U과 TRU 핵종의 산화 전위차 및 용해도 특성을 이용하여 U만을 탄산용액에 용해시키고 TRU와 거의 대부분의 FP는 혼합 침전물로 분리하며, 이후 U과 같이 일부 용해된 불순물 핵종(Cs, Tc, Mo)을 U으로부터 분리하기 위하여 U과 선택적 흡착을 하는 amidoxime을 통한 U만을 분리한 후 pH를 조정에 의하여 U을 고순도로 침전 분리한다. 이때 공정에서 사용된 탄산염 및 무기산 용액은 전부 회수/순환시켜 2차 폐기물의 발생이 거의 없도록 한다. 이러한 공정에서는 Pu와 MA 핵종은 어떠한 경우도 단독으로 분리될 수 없으며 기술적으로도 PUREX, UREX등과 유사성이 없어 개발 기술이 높은 핵확산저항성을 가지며 또한 OH⁻를 이용한 침전법 및 전해 탄산염 순환 기술을 사용하여 환경친화성 및 조업안정성을 가지게 된다.

본 연구에서는 Fig.1의 공정에서 U이 분리된 후 불순물 금속이온 (Mo, Tc 등)을 함유한 탄산염 용액을 salt-free의 전해적인 방법에 의한 공정 내에서 회수/순환시키기 위한 방법이 연구되었다.

2. 실험 방법

본 연구에서 사용된 전해 탄산염 회수 장치에서는 Fig.2에서와 같이 양이온 교환막인 Nafion 424를 갖는 분리막 전해 반응기와 CO₂ 흡수탑을 연결하여 사용하였으며, 탄산용액으로는 소량의 Mo, Re (Tc 대용물질), Mo 및 Cs를 함유한 0.5 M Na₂CO₃ 용액을 사용하였다. 양극과 음극에서 발생하는 물 분해 반응에 의해 양극방으로 주입되는 탄산용액은 산성화 되면서 CO₂ 가스를 방출되고, 이 CO₂ 가스는 NaOH가 생성되는 음극방과 연결된 CO₂ 흡수탑을 통해 회수되었다. 용액계의 탄산염 농도는 TOC에 의해 분석되었으며, 금속 이온은 ICP를 통해 분석되었다.

3. 결과 및 고찰

Fig.3에 전해 반응기에 의한 탄산염 회수 특성을 보이는 대표적이 결과를 보인다. 탄산용액을 가지는 양극방의 pH는 초기 11.5를 보이나 용액이 물 분해 반응에 의해 산성화되면서 전형적인 탄산염 적정 곡선과 같이 2개의 변곡점을 가지며 pH 1정도까지 변화되었고, 약 pH 7 이하에서부터 이때 용액중의 탄산염은 99% 이상 CO₂로 탈기 되었다. 한편 음극방에서는 양극방으로부터 전해 영동에 의해 이동된 Na⁺ 이온과 물 분해 반응에 의해 pH가 거의 14를 가지는 알카리 용액이 생성되고 이 용액이 CO₂ 흡수탑으로 순환되면서 양극방에서 발생된 CO₂를 CO₃²⁻로 변환시키며

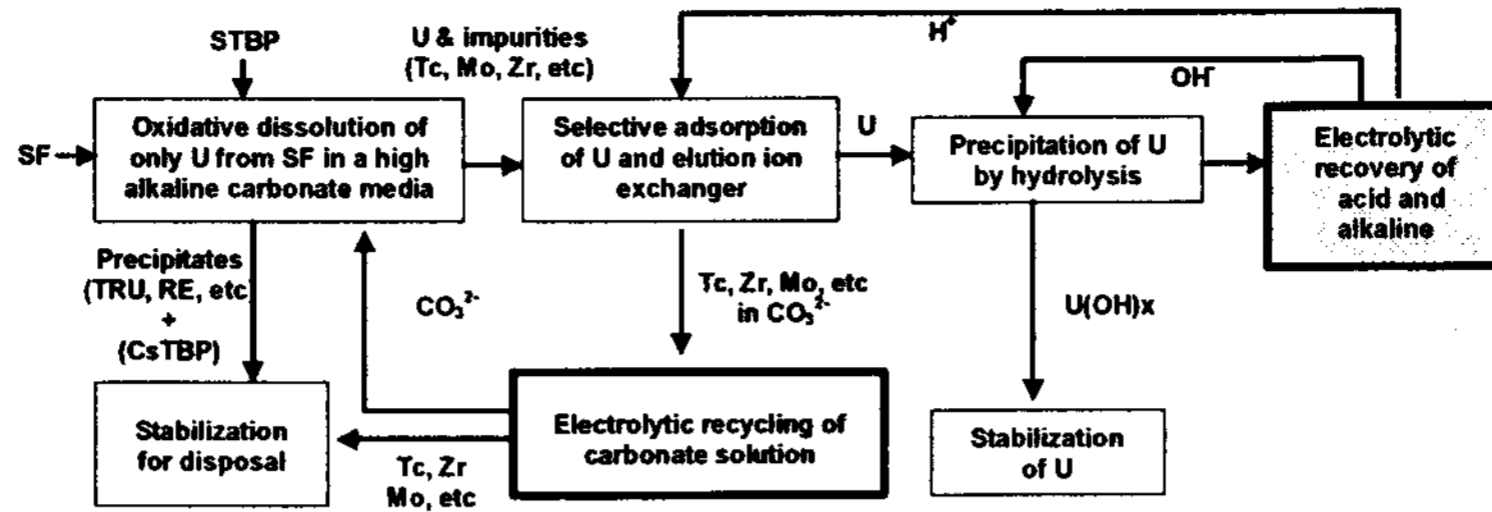


Fig.1 Conceptual diagram of a process to recover only U from a nuclear spent fuel by an oxidative dissolution of U in a strong alkaline carbonate media.

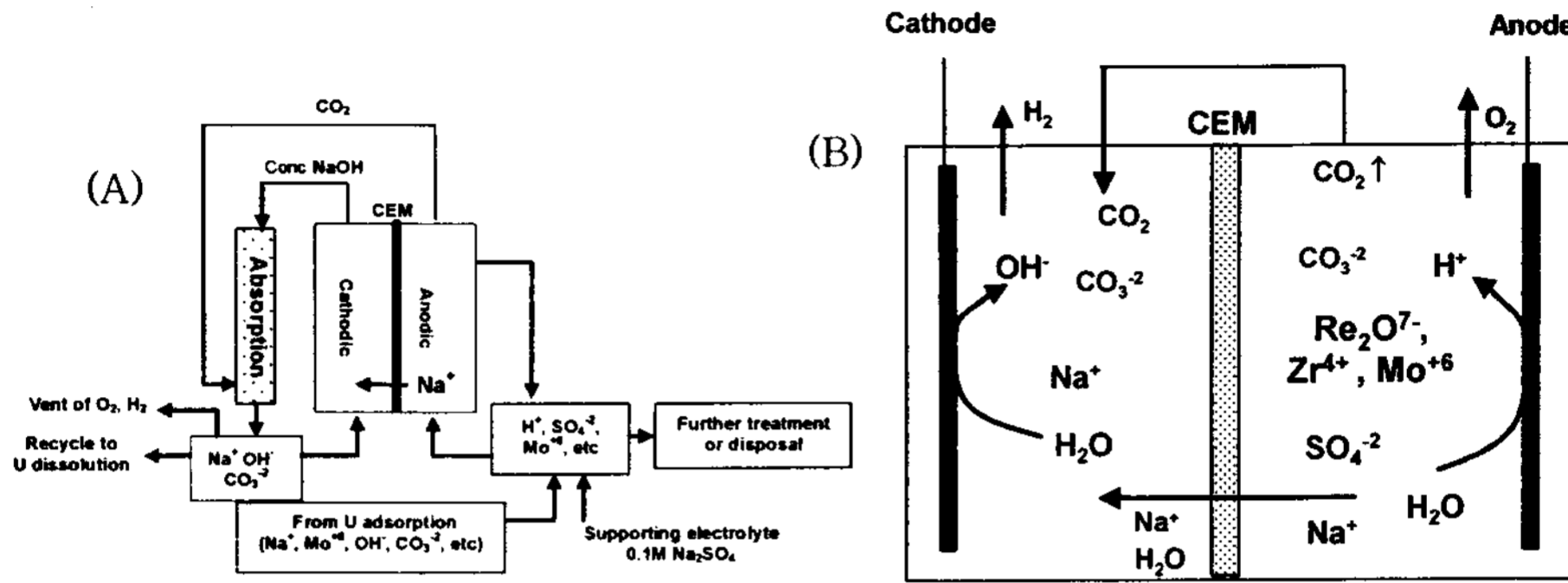


Fig.2 Experimental apparatus diagram (A) for an electrolytic de-carbonation and recycling of a sodium carbonate salt and electrolytic reaction mechanism in the cell (B).

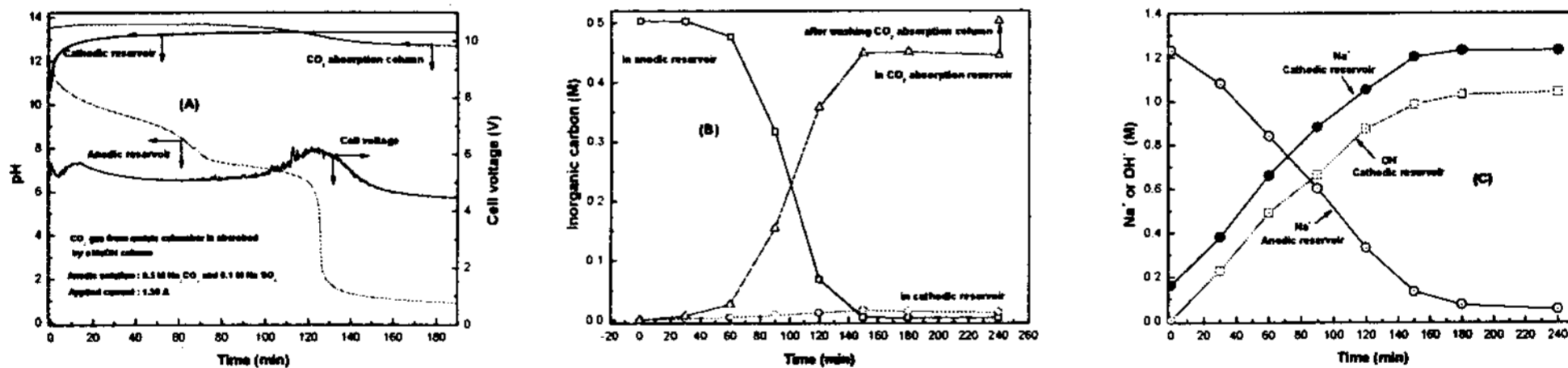


Fig.3 Changes of pH and its cell voltage (A), of inorganic carbon concentrations (B), and of sodium and hydroxyl ions in a system with an independent CO₂ absorption column and with using an anodic solution of 0.5 M Na₂CO₃ containing 0.1 M Na₂SO₄ and a cathodic solution of 0. M Na₂SO₄ with a change of electrolytic time.

pH가 다소 감소되나, 이후 곧 회복되는 것을 관찰 할 수 있다. 또한 탄산염에 포함된 Na⁺가 이온 교환막을 통과하는 만큼 음극방의 OH⁻농도가 생성됨을 관찰 할 수 있다. 음이온 교환막을 사용하는 경우 Na⁺가 이동을 하지 못하여 탄산염의 회수가 거의 일어나지 않음을 실험적으로 관찰 할 수 있었다. 양이온 교환막을 사용하는 경우 Fig.2와 같은 방법에 의해 금속 이온을 함유하는 탄산 용액에서 금속이온을 분리하며 거의 100% 가깝게 회수 순환을 할 수 있음을 알 수 있었다. 양이온 교환막에서 +1가 금속이온인 Cs⁺은 Na⁺와 같이 음극방으로 이동을 하지만, 나머지 Mo, Re, Zr 등은 음극방으로 전혀 이동을 하지 못한다. 따라서 Fig.1에서 전해 탄산염 회수 단계 전에 Cs를 제거하는 방법이 추가로 고려되어야 함을 알 수 있었다.

참고문헌

[1] N. Asanuma, M. Harada, Y. Ikeda and H. Tomiyasu, *J. Nucl. Sci. Tech.*, 38, 866 (2001).