

Na₂CO₃-H₂O₂ 계를 이용한 사용후핵연료로부터 U만의 회수 기술

김광욱, 김연화, 김성민, 서희승, 임제관, 정동용, 조기수, 양한범, 이일희

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진대로 1045

nkwkim@kaeri.re.kr

1. 서론

본 연구에서는 종래의 습식 공정 기술과는 달리 고 알카리 탄산염 용액 계를 이용한 SF로부터 SF의 대부분을 차지하는 U만을 회수할 수 있는 Fig.1과 같은 공정을 제시하였고 이 공정의 가능성을 평가하기 위한 관련 단위 공정을 시험 평가하였다. Fig.1의 공정은 Na₂CO₃-H₂O₂ 계 사용하여 SF로부터 TRU 핵종과 기타 FP은 혼합된 불용해물로 침전시키면서 U만의 용해 침출 단계, U 침출과정에서 U과 같이 동반 용해된 불순물 핵종 (Cs, Tc, Mo, Te)중 처분 시 환경에 영향을 미치는 Cs, Tc의 침전 분리 단계, pH 조절을 통한 U함유 탄산염 용액으로부터 U의 침전 회수 단계, 계에 사용된 탄산염과 산-알카리의 회수/순환 단계로 구성되어 있다. 제시된 공정에서는 Pu을 포함하는 TRU 핵종은 개별 핵종으로 용해 분리되는 흐름이 없다는 점과, PUREX, UREX에서 사용되는 용매추출 기술이 전혀 사용되지 않음으로서 높은 핵확산 저항성을 가지게 되고, 공정으로부터 유기 폐액의 발생이 없으며 사용된 염은 모두 salt-free한 방법으로 회수 순환시킬 수 있음으로서 폐기물 발생이 최소화되어 높은 환경친화성을 가지는 특징을 지닌다.

2. 실험 및 결과

본 연구에서는 SF를 이용한 실험을 할 수 없으므로, 본 연구의 핵심인 Na₂CO₃-H₂O₂ 계에서 TRU의 불용해성을 평가하기 위하여 먼저 H₂O₂에 대한 U과 TRU의 산화-환원 전위 비교를 통한 열역학적 용해성을 Fig.2와 같이 평가하였다. H₂O₂는 산화-환원 전위관점에서 U에 대해서는 산화제로 작용하고 Pu, Np, Am등에 대해서는 환원제로 작용하여, H₂O₂를 사용하는 경우 SF의 악티나이드 핵종 중 U만을 선택적으로 용해시킬 수 있음을 알 수 있다. Fig.3에는 구입된 Np용액으로부터 제조된 NpO₂의 0.5M Na₂CO₃-1.0M H₂O₂ 에서 용해성이 나타나 있다. H₂O₂를 가지는 탄산염 용액에서 NpO₂의 용해도는 약 10⁻⁹ M 정도이었다. 반면에 UO₂는 Fig.4에서 보는 바와 같이 Fig.3과 동일한 탄산용액에서 약 10분내 완전 용해되고 이때 용해된 U은 UO₂(O₂)_x(CO₃)_y^{2-2x-2y} 형태로 그 용해도는 H₂O₂ 농도에 비례하며 0.3M 이상이 될 수 있음을 관찰하였다. Fig.5에는 Fig.3과 동일한 탄산염 용액에서 U, TRU를 제외한 SF의 주요 핵종에 대한 용해 결과가 나타나 있다. 오직 Cs, Re(Tc 대응), Mo, Te 만이 용해되고, 나머지 핵종은 거의 용해가되지 않음을 알 수 있다. 따라서 Fig.2~Fig.4의 결과로부터 Na₂CO₃-H₂O₂ 용액 계를 사용하는 경우 SF로부터 오직 U과 Cs, Tc, Mo, Te만을 선택적으로 용해 침출시킬 수 있음을 알 수 있고 나머지 핵종은 혼합 침전됨을 알 수 있다.

U과 같이 동반 용해된 Cs, Tc은 NaTPB(Sodium tetraphehyl borate), TPPCl (Tetraphenyl phosphonium chloride) 침전제를 이용하여 선택적으로 99% 이상 침전을 시킬 수 있었음 이전의 연구에서 발표하였다. Fig.6에는 Cs, Tc이 제거된 MO₂(O₂)_x(CO₃)_y^{2-2x-2y} 형태의 U 탄산염 용액의 pH를 2-4로 조절함으로써 U을 99.9 % 이상의 고효율 침전시킬 수 있음이 나타나 있고, 그 침전물은 XRD 분석을 통해 UO₄ 형태임을 확인하였다. UO₄의 용해도는 약 10⁻⁴ M 이하로 알려져 있다. 탄산염 용액을 양이온 교환막을 이용하는 전해적 방법에 의해 pH를 조절하는 경우 이산화탄소로 변환되는 탄산염 이온은 다시 탄산염으로 99% 이상을 회수 할 수 있음을 위에서 언급한 이전의 연구에서 발표한 바 있다. Fig.7에는 U이 침전 제거된 후 잔여 용액에 남은 Mo, Te 금속 이온의 분리와 용액으로부터 U 침전 단계에서 사용된 산과 알카리를 회수하기 위하여 양이온 교환막과 음이온 교환막을 사용하는 전해 투석 방법을 사용하는 실험 결과가 나타나 있다. 전체 계

에서 사용된 무기염 이온을 99% 이상 산과 알카리로 다시 회수 할 수 있음을 볼 수 있다. 이상의 결과로부터 $\text{Na}_2\text{CO}_3\text{-H}_2\text{O}_2$ 용액 계를 사용하는 본 연구의 공정은 TRU가 전혀 용해되지 않고, 폐기물 발생이 거의 하지 않아 높은 해화산 저항성과 환경 친화성을 가지며 SF로부터 U만을 회수 할 수 있음을 알 수 있었다.

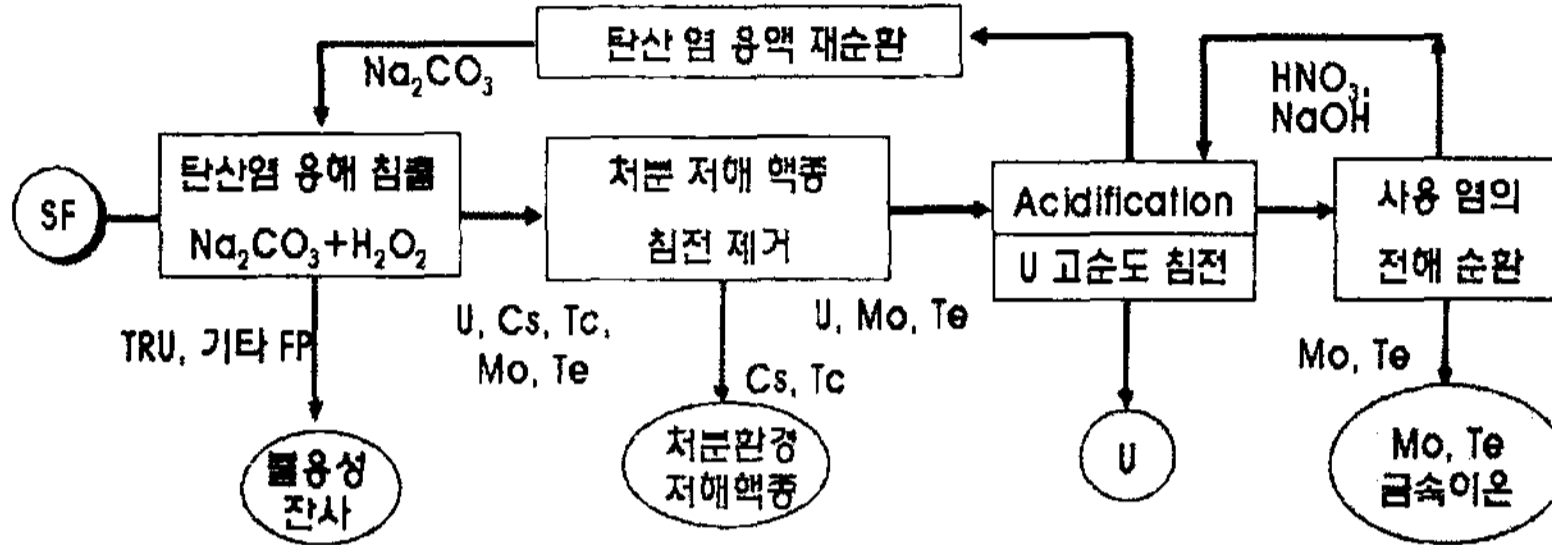


Fig.1 탄산염 용액계를 이용한 SF로부터 U만의 회수 공정

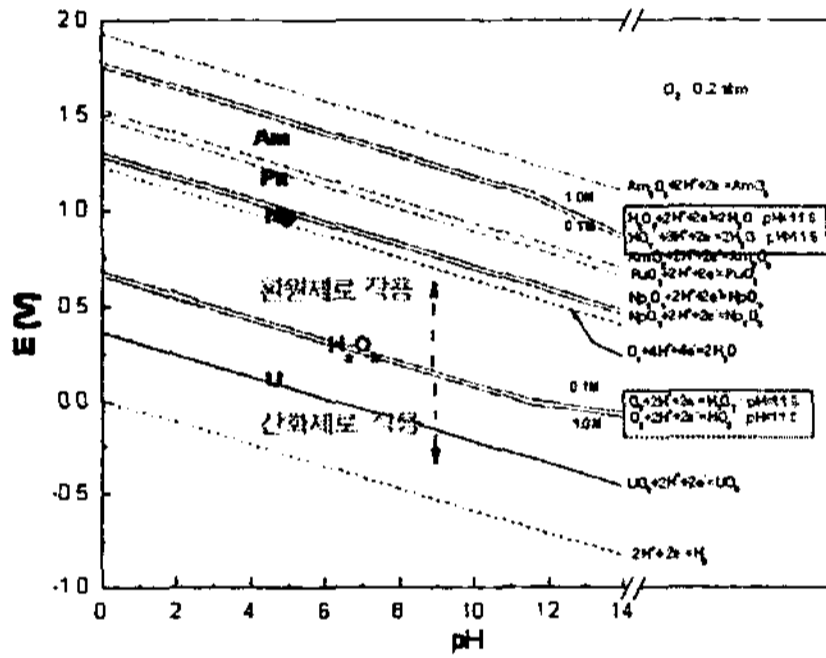


Fig.2 pH에 따른 악티나이드 해종의 E^v

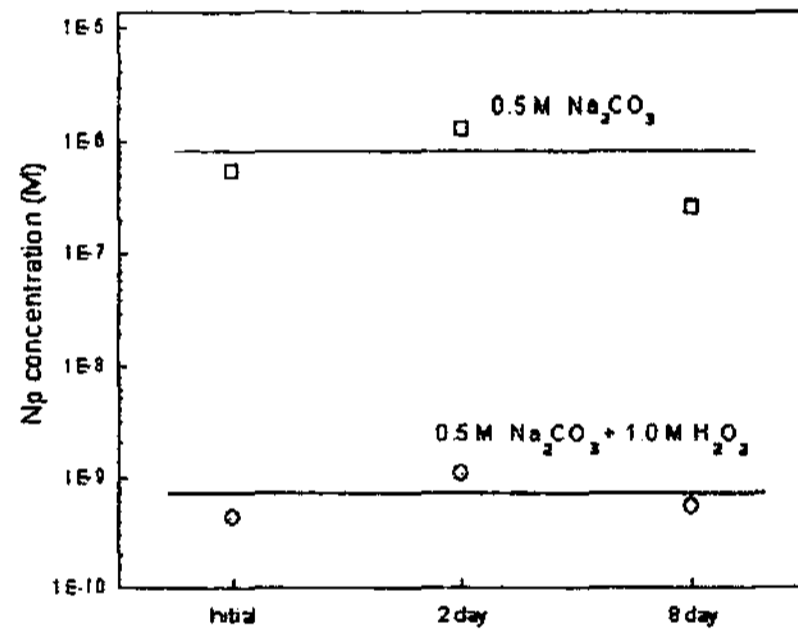


Fig.3 탄산염 용액에서 NpO₂의 용해

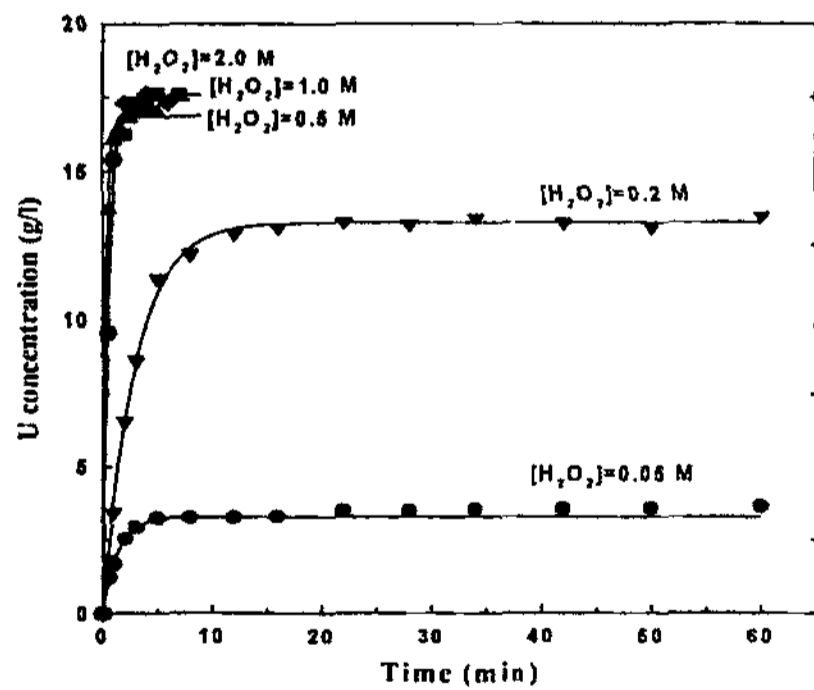


Fig.4 탄산염 용액에서 UO₂의 용해

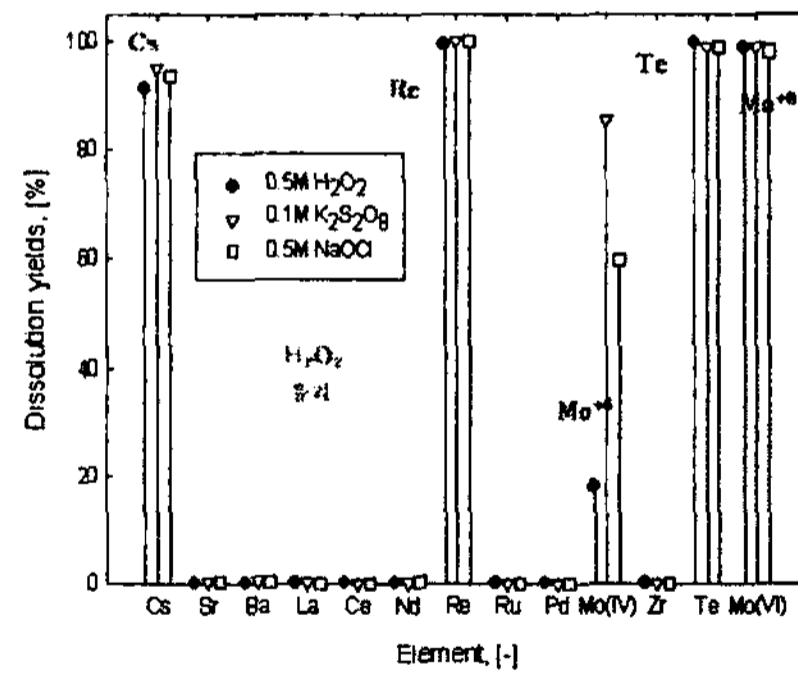


Fig.5 Cs, Re(Te)의 선택적 용해

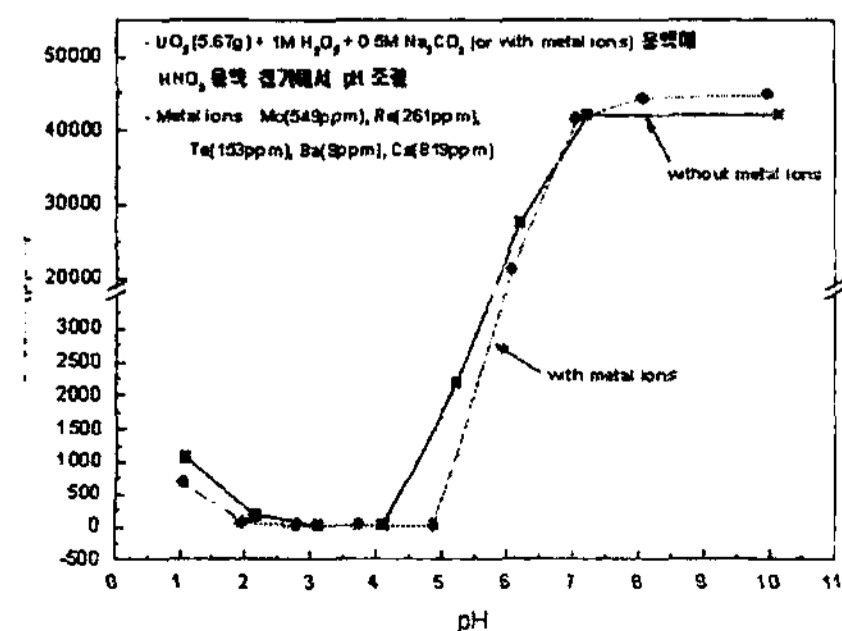


Fig.6 U탄산염 착물의 pH에 따른 용해도

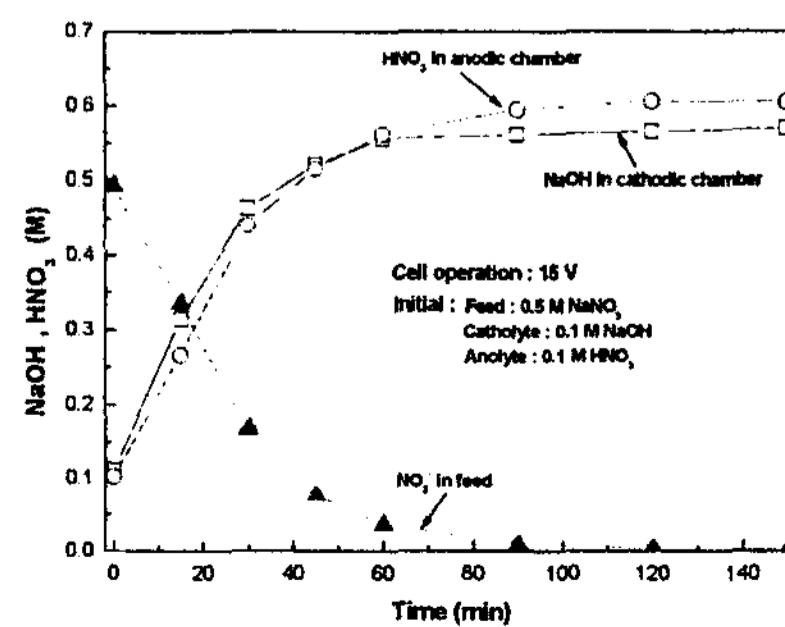


Fig.7 산 알카리 용액의 전해투석 회수