

탄산염용액에서 Tellurium dioxide 용해특성

양한범, 임재관, 정동용, 이일희, 김광욱

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150 번지

nhbyang@kaeri.re.kr

1. 서론

핵확산 저항성을 유지하면서 사용후핵연료(SF)의 효율적인 관리 및 재활용할 수 있는 원자력 에너지의 안정적 공급시스템을 구축과 연관된 분리공정 연구가 진행되고 있으며, 최근에는 고준위 방사성폐기물을 탄산염 용액에서 산화용해-침전 분리기술 연구에 대한 관심이 고조되고 있다. PWR 사용후 핵연료중에 함유되어 있는 원소와 함량을 ORIGEN 코드로 계산한 자료에 의하면, 악티나이드 원소(U, Np, Pu, Am)와 핵분열생성물(FP)로 구성되면, FP는 알카리 금속(Cs, Rb), 알카리 토금속(Sr, Ba), 희토류원소(Y, La, Ce, Pr, Nd, Sm), 백금족원소(Ru, Rh, Pd) 및 기타 전이 원소(Zr, Mo, Tc, Te)로 이루어져 있다. 본 연구팀에서는 탄산염계에서 우라늄의 선택적 용해침출 및 침전에 의한 SF로부터 우라늄만의 고순도 회수 연구에 대상으로 탄산염에서 우라늄 및 FP의 산화용해 현상, 우라늄과 FP의 분리, 우라늄의 고순도 침전 결정화 연구를 수행하고 있다. 사용후 핵연료중 탄산염 용액계에서 우라늄만을 선택적으로 용해시킬 때 동반 용해 가능성이 있는 우라늄을 제외한 악티나이드 원소와 핵분열생성물 원소에 대한 탄산염 용액계에서 용해도 기초실험을 수행하고 있다. 본 연구에서는 핵분열생성물 원소에 대한 탄산염 용액에서 용해도 기초실험 결과 용해도가 비교적 원소군(MoO_3 , MoO_2 , TeO_2) 중에서 SF(초기농축도 3.2%, 연소도 33 GWd/tU, 냉각기간 10년)중 Origen 코드 계산에 의한 함량이 약 0.047 wt%인 Tellurium dioxide (TeO_2) 산화물의 탄산염용액에서 용해특성을 실험하였다.

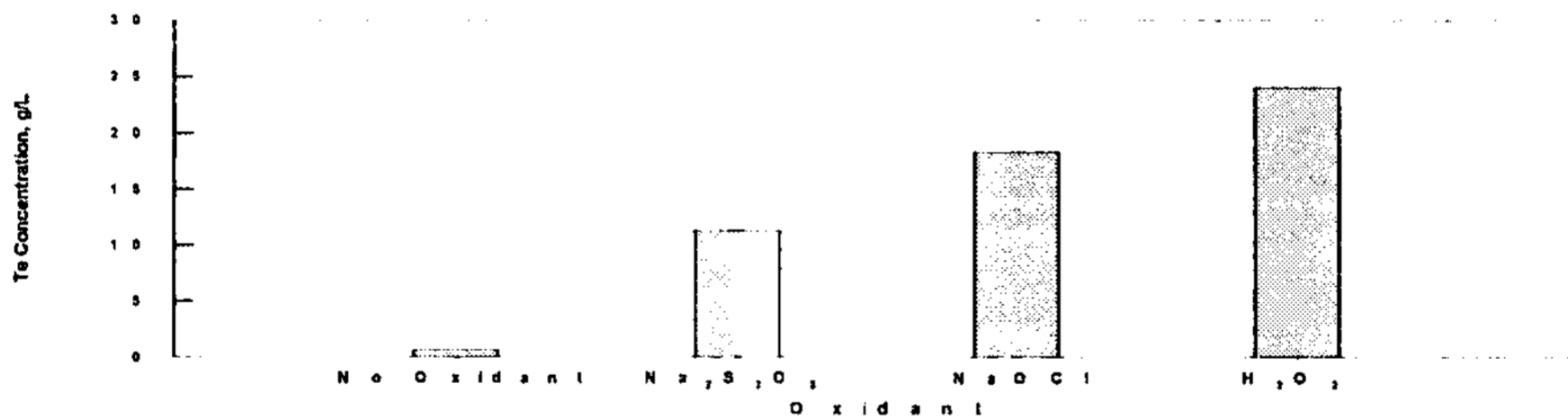
2. 실험 방법

Te는 핵분열생성물중 전이원소로 사용후핵연료에서의 존재 형태는 세라믹 침전(ceramic precipitate) 형태와 핵연료 용해된 산화물 (oxide dissolved in the fuel) 형태의 혼합 형태로 존재하므로, 본 실험에서는 TeO_2 를 사용하였다. 실험에 사용한 우라늄산화물은 UO_2 분말이며, 입자 크기는 평균 $5.4\mu\text{m}$ 이다. 탄산염 용액은 시약급 Na_2CO_3 와 NaHCO_3 를 사용하여 만들었으며, $8 < \text{pH} < 12$ 용액의 Na_2CO_3 와 NaHCO_3 혼합용액의 pH조절은 Henderson-Hasselbalch 식으로 1M [Na_2CO_3]와 1M [NaHCO_3] 용액의 혼합비를 계산하여 원하는 pH의 용액을 만든 후 pH 미터로 측정하여 사용하였다. 그리고 $\text{pH} > 12$ 이상의 Na_2CO_3 용액의 pH조절은 5M NaOH로 pH 조정 후 pH 미터로 측정하여 사용하였다. 용해실험은 항온 진탕기를 사용하여 48시간 용해한 다음 고액분리가 되도록 방치한 후 상등액중 일부를 취하여 $0.22\mu\text{m}$ syringe filter로 여과한 용액중 1mL를 취하여 4M HNO_3 용액 1mL와 혼합한 후 ICP로 Te 농도를 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

Tellurium dioxide (TeO_2) 산화물의 탄산염용액에서 용해특성 실험은 사용후핵연료중 우라늄만을 선택적으로 용해 침출하기 위한 화학적 산화 실험조건에서의 제한적 조건하에서의 용해도 특성 실험이므로 TeO_2 의 용해특성 실험도 사용후핵연료중 우라늄만을 선택적으로 용해 침출하기 위

한 화학적 산화 실험조건하에서 수행하였다. 0.5M Na_2CO_3 용액에서 몇 가지 산화제를 선정하여 TeO_2 용해도에 미치는 영향을 실험하였다. Fig. 1은 몇 가지 산화제에 대한 TeO_2 의 용해도 실험 결과를 나타낸 것으로 No oxidant < $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_8$ < NaOCl < H_2O_2 순서로 TeO_2 의 용해도는 증가하였다. 이때 산화제는 Te(IV) 를 Te(VI) 로 산화시켜 TeO_2 의 용해도를 증가시키는 작용을 하고 있다. 0.5M (Na_2CO_3 + NaHCO_3) 혼합용액에 대한 pH 영향을 조사한 결과 Te(IV) 의 용해도는 pH가 증가할수록 증가하였다. Na_2CO_3 농도가 TeO_2 용해도에 미치는 영향을 조사한 결과 Na_2CO_3 의 농도가 증가할수록 TeO_2 의 용해도는 Fig. 3과 같이 증가하였다. NaHCO_3 농도가 TeO_2 용해도에 미치는 영향을 조사한 결과 NaHCO_3 의 농도가 증가할수록 TeO_2 의 용해도는 증가하였으나 Na_2CO_3 농도변화가 TeO_2 용해도에 미치는 영향 보다는 작게 나타났다. 그리고 산화제 H_2O_2 가 TeO_2 용해도에 미치는 영향을 실험한 결과 일정한 0.5M Na_2CO_3 농도에서 H_2O_2 농도를 증가시킨 경우, TeO_2 용해도는 H_2O_2 농도가 증가함에 따라서 TeO_2 의 용해도는 증가하였다. 그러나 pH가 다른 0.5M (Na_2CO_3 + NaHCO_3) 혼합용액에 대하여 1M H_2O_2 공존하는 조건에서 측정된 TeO_2 용해도를 보면, 혼합용액의 pH가 증가할수록 TeO_2 용해도는 감소하였다. 이와같은 현상에 대해서는 Na_2CO_3 , NaHCO_3 , H_2O_2 및 pH에 대한 상호작용에 대한 추가적인 실험이 요구된다. 우라늄 및 13성분의 다성분 핵분열생성물이 공존하는 모의핵연료 조성과 유사한 실험조건에서 공존 우라늄 및 다성분 핵분열생성물이 TeO_2 의 용해도에 미치는 영향에 대한 실험결과, TeO_2 단일성분에 대한 실험결과에 대비하여 TeO_2 의 용해도는 현저히 감소하였다.



1 Fig. 1. Solubility of TeO_2 in the 0.5M Na_2CO_3 solution with the different oxidant

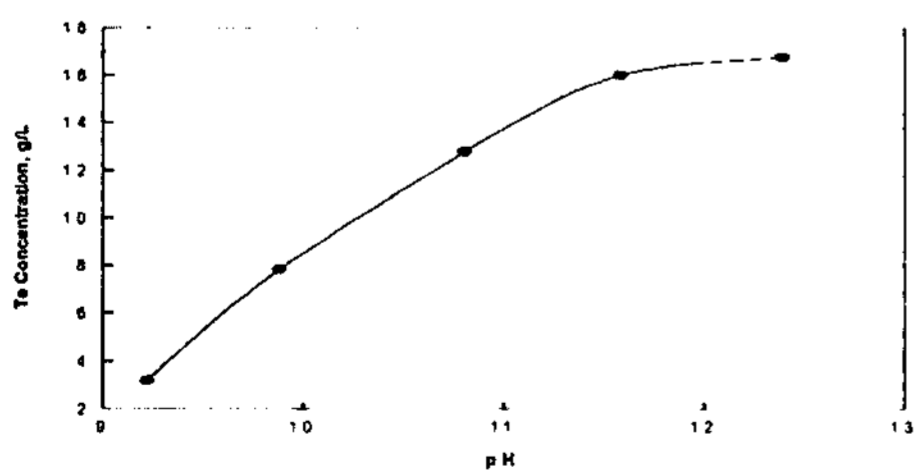


Fig. 2. pH effect on the solubility of TeO_2

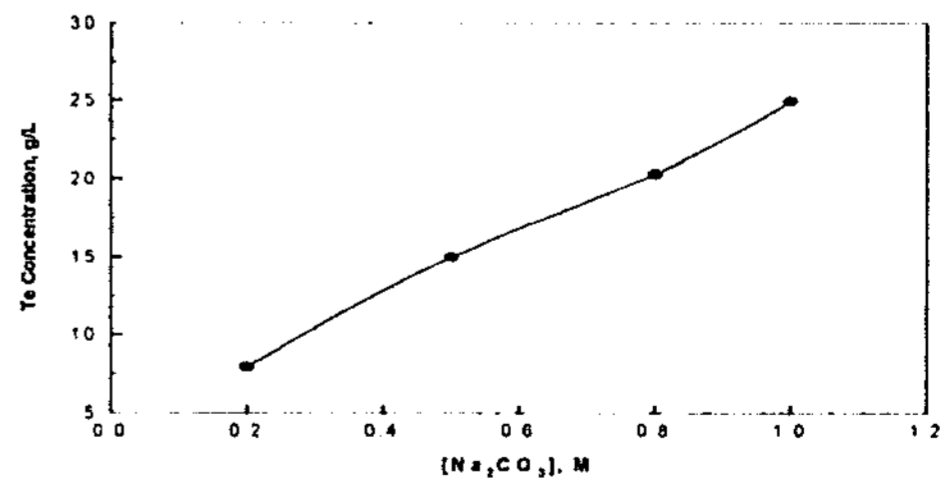


Fig. 3. Na_2CO_3 concentration effect on the solubility of TeO_2