

## 탄탄족 원소를 이용한 LiCl-KCl/Bi 계에서의 환원추출 균분리 연구

배주동, 박병기\*, 황일순

서울대학교, 서울시 관악구 대학동 서울대학교 공과대학 31-1동 401호, 151-742

\*순천향대학교, 충남 아산시 신창면 읍내리 순천향대학교 공과대학 9122호, 336-885

jd32@snu.ac.kr

### 1. 서론

사용후핵연료의 독성과 부피를 감소시키고 제4세대 원전인 고속로의 연료로서 재활용하기 위해 파이로프로세스(Pyroprocess)에 대한 연구가 국내외에서 활발히 이루어지고 있다. 한국원자력연구원을 중심으로 연구되고 있는 파이로프로세스는 핵연료봉 해체 및 절단, 피복관 분리, 전해환원, 전해정련, 전해제련 등의 주요 요소공정으로 이루어져 있으며, 이 공정들을 통해 최종적으로 배출되는 폐기물의 부피 및 독성을 약 1000배 감소시키는 것을 목표로 하고 있다.[1] 본 연구에서는 기존에 개발된 주요요소공정에 더해 잔류악티늄족 회수(Residual Actinide Recovery, RAR) 공정을 추가함으로써 사용후핵연료를 중저준위화할 수 있는 PyroGreen이라 명명된 사용후핵연료 관리개념을 도입하고, RAR 공정 개발을 위한 실험을 진행하였다.[2] Ce, La, Y, Cs의 4가지 탄탄족 원소를 이용하여, LiCl-KCl/Bi 계에서 환원추출 실험을 수행하였으며 그 결과를 기존문헌 결과와 비교하였다.

### 2. 본론

#### 2.1 실험준비 및 절차

본 연구는 산소와 수분 농도가 1 ppm 이하로 유지되는 글로브박스 내에서 이루어졌으며, Sigma aldrich로부터 구매한 순도 99.999% 이상의 시약을 사용하였다. 환원제로 사용되는 Li는 실험전에 Li-Bi(Li 약 1wt%)의 합금 형태로 미리 제조하여정량 후, 실험에 사용하였다.

실험은 LiCl-KCl, Bi, CeCl<sub>3</sub>, LaCl<sub>3</sub>, YCl<sub>3</sub>, CsCl를 정량하여 실험셀에 넣은 후, 약 4번에 걸쳐 Li-Bi을 추가하고 반응시킴으로써 각 Li-Bi의 추가량에 따른 농도변화를 측정하였다. Li-Bi 추가 후 약 4시간동안 교반을 시키며 반응을 시켰으며, 반응 후에는 용융염과 액체금속 간의 완전한 분리가 이루어지도록 하기 위해 2시간이 지난 후

샘플을 채취하였다. 각 단계마다 약 50mg 내외의 용융염을 채취하여 ICP-MS법으로 농도를 분석하였다.

#### 2.2 실험결과 및 논의

Figure 1은 ICP-MS 분석 결과에 의해 얻어진 용융염내의 Ce, La, Cs, Y의 농도를 처음 농도에 대한 백분율로 계산하여, 추가한 Li-Bi합금의 양에 따른 변화를 나타낸 것이다. 추가된 Li-Bi의 양이 증가함에 따라, Ce-La-Y-Cs 순으로 용융염에서의 농도가 줄어드는 것을 확인할 수 있다. 이와 같은 경향성은 기존 문헌의 결과와 잘 일치한다.

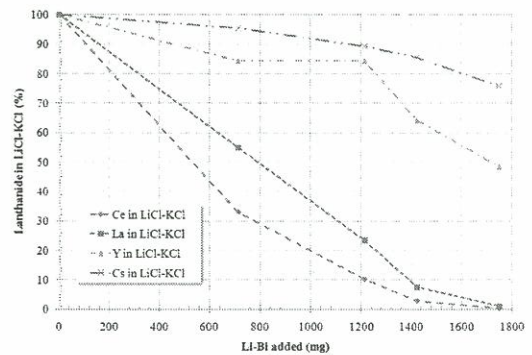


Fig. 1. Changes of lanthanide concentration in molten salt vs. added Li-Bi

Figure 2는 Ce의 분배계수에 대한 Ce, La, Y, Cs 각 원소의 분배계수를 나타낸 것이다. Ce-La 그리고 Y-Cs 간의 차이에 비해 La-Y 간의 차이가 더 큰 것을 확인할 수 있으며, 이 차이를 이용하여 Cs-Y/La-Ce 간의 균분리가 가능하다. 하지만 기존문헌의 결과와는 달리, Ce의 분배계수에 대한 Y의 분배계수 값의 기울기가 Ce, La과 같이 1이 아닌 Cs과 유사한 값을 가짐을 확인할 수 있었다. 이렇게 기존 문헌과 다른 결과의 원인으로 는 두가지를 생각해 볼 수 있는데, 우선  $Y^{3+} \rightarrow Y^0$

의 단단계 환원이 아니라  $Y^{3+} \rightarrow Y^{2+} \rightarrow Y^0$ 의 2단계 환원반응이 일어날 가능성이 있다. 두 번째는 각 단계의 반응이 완전히 평형상태에 이르지 않았을 가능성이 있다. Table 1에는 Ce의 분배계수를 기준으로 계산한 분리지수(Separation Fator)를 나타내었는데 Y의 경우 기존 CRIEPI 실험 결과에 비해 작은 값을 가짐을 알 수 있다.[3] 이로 미루어볼 때, Y의 분배계수 기울기가 기존 문헌 측정값과 일치하지 않는 것은 반응이 완전히 평형상태에 이르지 않았기 때문이라고 판단할 수 있다. 따라서 반응시간을 더욱 증가시킨 조건으로 실험을 수행하였으며, 농도분석 결과를 이번 학회에서 발표할 예정이다.

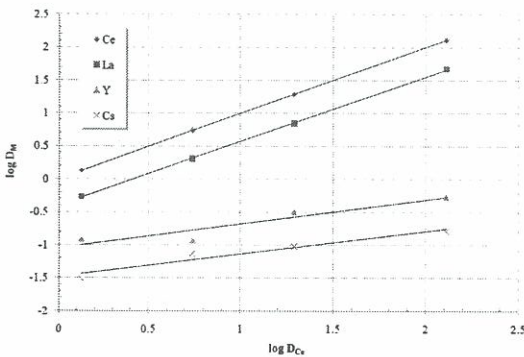


Fig. 2. Calculated Distribution coefficient of Cs, Y, La, Ce vs. D<sub>Ce</sub>

Table 1. Measured separation factor of lanthanide elements in LiCl-KCl/Bi system

	This study (LiCl-KCl/Bi)	M.Kurata et. al., 1995 (LiCl-KCl/Bi)	M.Kurata et. al., 1995 (LiCl-KCl/Cd)
Ce	1	1	1
La	2.76	3.03	2.63
Y	240.92	707.86	109.09
Cs	803.75	-	-

### 3. 결론

사용후핵연료의 중저준위화를 위해 기존 파이로프로세스 공정의 일부로서 추가할 수 있는 RAR공정의 연구개발을 위해, LiCl-KCl/Bi 계에서의 환원추출 실험을 수행하였다. 추가한 Li의 양에 따른 란타늄 원소들의 환원경향성에서 기존 문헌과 같은 결과를 확인할 수 있었다. 하지만 Y의 분배계수 및 La-Y 사이의 분리지수 차이에

있어서는 기존 문헌값과 차이를 보였으며, 이를 보완하기 위한 실험을 수행하였다. 보완 실험결과와 학회에서 발표될 예정이다.

### 4. 감사의 글

본 연구는 기초원자력연구소(Basic Atomic Energy Research Institute, BAERI) 사업(Program code: E009-00-78190)을 통한 지식경제부의 재정적 지원에 의해 이루어졌습니다.

### 5. 참고문헌

- [1] E. H. Kim, "Current status on development of P&T in KOREA", 9th IEMPT, NIMES, France, September, 2006.
- [2] H. O. Nam, et. al., "All the Spent Nuclear Wastes to Low and Intermediate Level Wastes: PyroGreen", Proceedings of Global 2009, Paris, France, 2009.
- [3] M. Kurata, et. al., "Distribution behavior of uranium, neptunium, rare-earth elements (Y, La, Ce, Nd, Sm, Eu, Gd) and alkaline-earth metals (Sr,Ba) between molten LiCl-KCl eutectic salt and liquid cadmium or bismuth", Journal of Nuclear Materials, Vol. 227, p.110-121, 1995.