

사용후핵연료 파이로프로세싱 발생 폐전해질 내 2족 핵종 분리 및 고형화

은희철*, 최정훈, 김나영, 이태교, 조인학, 한승엽, 이기락, 박환서, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*ehc2004@kaeri.re.kr

1. 서론

재활용을 목적으로 사용후핵연료에서 U 및 TRU 금속을 회수하기 위해 한국원자력연구원에서 개발 중인 사용후핵연료 파이로프로세싱에서는 염화물 형태의 2족 핵종을 함유한 폐전해질 즉, 염폐기물이 방사성 폐기물로서 상당량 발생된다[1]. 이러한 염폐기물은 물에 대한 용해도가 높고 고화체 제조가 용이하지 않아 최종처분을 위해서는 안정적인 형태로 전환하여 처리할 수 있는 기술이 필요하다[2]. 염폐기물은 대부분이 전해질로 사용되는 알칼리 금속염화물(LiCl or LiCl-KCl)로 구성되어 있어 감용 효과를 증대시키고 최종처분을 위한 고화체 제조를 용이하게 하기 위해서는 염폐기물에서 핵종만을 안정한 형태로 분리하는 것이 가장 효과적인 방법이며, 특히 2족 핵종 중 Sr-90은 고방열성 핵종으로서 핵종만을 분리할 경우 RTG 열원으로서의 활용 방안을 모색하는데 기반자료로 활용될 수 있다[3].

본 연구에서는 사용후핵연료 파이로프로세싱에서 발생하는 폐전해질 내 2족 핵종의 분리 및 고형화를 위한 방안 수립을 목적으로 LiCl 또는 LiCl-KCl 공용염 내 2족 핵종(Ba, Sr) 염화물의 분리 및 고형화실험을 실시하였다.

2. 실험방법 및 결과

본 연구에서 전해질 내 2족 핵종분리는 반응증류공정을 통해 실시되었으며, Fig. 1에 나타난 장치를 이용하여 수행하였다. 이 장치는 휘발챔버와 응축챔버가 하나의 몸체로 구성된 감압증류장치(2 kg/batch)로 휘발된 공용염을 대부분 회수하는데 초점을 맞추어 공용염 증기가 한 위치에서만 고체상으로 응축될 수 있도록 제작하였다. 이 장치는 독립적으로 제어할 수 있는 네 개의 전기히터(최대 1,100°C)가 설치되어 있으며, 이를 통해 영역별 온도제어 및 장치 내부의 온도구배 조성이 가능하며, 감압장치(진공펌프, 540 L/min)를 이용하여 장치 내부를 10^{-3} Torr까지 감압할 수 있다.

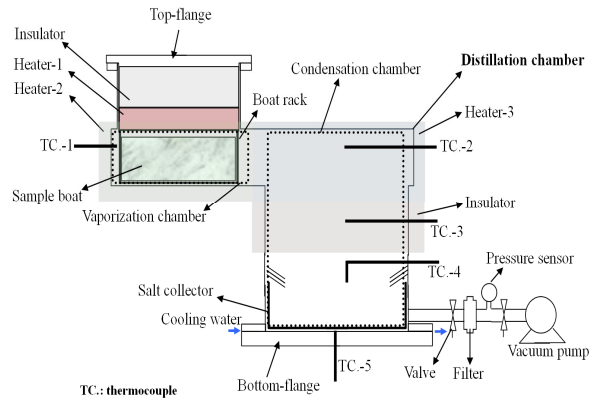


Fig. 1. Schematic diagram of the experimental equipment used in this study.

전해질 내 2족 핵종분리는 LiCl-KCl 공용염(Alfa Aesar, 99%, LiCl 몰비: 0.58) 또는 LiCl과 이 염과 혼합한 무게기준으로 각각 2.5wt%의 BaCl₂(Alfa Aesar, 99.9%)와 SrCl₂(Alfa Aesar, 99.9%)을 함유한 모의 폐전해질에 첨가제(Li₂CO₃: Alfa Aesar 99%, K₂CO₃: Alfa Aesar 99%)를 2족 핵종 대량 일정 몰비로 주입한 시료를 이용하여 수행하였다. 핵종의 화학적 반응은 LiCl의 경우 650°C에서, LiCl-KCl의 경우에는 450°C에서 1 시간 동안 실시되었다. 반응과정에서 장치 내부를 약 100 Torr로 감압하여 반응 중 발생할 수 있는 가스(CO₂)가 장치 외부로 원활히 배출될 수 있도록 하였다. 이 반응이 종료한 후 감압조건에서 장치 내부를 영역별로 운전조건(휘발챔버: 880-900°C, 응축챔버: 50-700°C)을 가열하여 장치 내부에서 공용염의 휘발 및 응축이 진행될 수 있도록 온도구배를 조성함으로써 2족 핵종반응생성물과 전해질인 염을 분리하였다. 고방열성 핵종을 포함하는 2족 핵종의 RTG 열원으로서의 활용성을 살펴보기 위해 2족 핵종의 고함량조건(45-50wt%, 산화물 기준)하 SiO₂와 CaO를 혼합하여 1350°C의 전기로에서 열처리함으로써 고화체를 제조하였다.

반응증류공정을 이용한 전해질 내 2족 핵종 분리는 매우 효과적으로 수행되었으며, 핵종분리 효율은 전해질의 종류에 관계없이 모두 99wt% 이상으로 나타났다. 분리된 2족 핵종들에서 Sr은

탄산화물 형태로, Ba은 산염화물 형태로 전환되었으며, 이 결과 또한 전해질의 형태와 관계없이 동일하게 나타났다. 2족 핵종에 대해 고함량조건에서 제조한 고화체는 SEM을 이용한 미세표면분석에서 매우 균질한 형태의 유리고화체를 형성하고 있는 것으로 나타났으며, PCT 침출시험결과, EA glass보다 우수한 내침출성을 가짐이 확인되었다.

3. 결론

첨가제 주입 반응증류공정을 이용한 전해질(LiCl or LiCl-KCl) 내 2족 핵종분리는 매우 효과적으로 수행되었으며, 2족 핵종의 고함량조건에서도 내침출성이 비교적 우수하고 균질한 유리고화체를 제조할 수 있음이 확인되었다. 이 결과들은 고방열성 핵종 함유 2족 핵종의 활용방안을 도출하는데 기초자료로 사용될 수 있으리라 판단되며, RTG 열원으로 활용을 위한 기반자료 구축을 위해 제조한 고함량의 2족 핵종 함유 유리고화체의 열적특성평가에 대한 자료가 추가적으로 확보되어야 할 것으로 사료된다.

4. 참고문헌

- [1] H.S. Lee, G.I. Park, G.H. Kang, J.M. Hur, J.G. Kim, D.H. Ahn, Y.Z. Cho and E.H. Kim, Nucl. Eng. Technol., 43, 317-328 (2011).
- [2] YZ Cho, TK Lee, HC Eun, JH Choi, IT Kim, GI Park, J Nucl Mater., 437, 47-54 (2013).
- [3] R. G. Lange, W.P. Carroll, Energy Conversion & Management, 49(3), 393-401 (2008).