

## 분리매질을 이용한 공용염(LiCl-KCl)내 핵종(Cs,Sr)제거 특성

강소림, 박환서, 손미숙, 김인태

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150-1

[solim79@hanmail.net](mailto:solim79@hanmail.net)

### 1.서론

사용후핵연료내 U 및 TRU의 회수공정으로 연구되고 있는 pyroprocess는 일련의 전기화학적 공정으로 이루어져 있으며, 각각의 공정에 따라 LiCl 또는 LiCl-KCl의 전해질을 사용하여 방사성 핵종을 함유한 염폐기물을 배출한다. 전해환원공정에서 배출되는 LiCl 염내에는 Cs 및 Sr이 주요 핵종으로 존재하며, 전해정련공정에서 배출되는 LiCl-KCl 공용염내에는 희토류 핵종들이 주로 존재한다. 반면, 금속핵연료인 EBR-II 핵연료는 전해환원공정 없이 전해정련공정만을 이용하여 배출되는 LiCl-KCl 공용염내에 Cs과 Sr 및 희토류 핵종들이 공존한다. 이 공용염폐기물의 최종처분부피를 최소화하기 위해, 미국의 INL에서는 제올라이트-4A로 핵종을 occlusion 또는 ion-exchange에 의해 제거하는 방법을 제안하였다. LiCl-KCl 공용염내 존재하는 핵종의 양은 I/II 족이 약 2wt%이고, 희토류 핵종이 약 5wt%를 차지하고 있어 제올라이트-4A를 이용하여 selective sorption에 의해 핵종을 제거하는 것이 제거용량 한계상 쉽지 않다. 따라서 제거대상의 핵종농도를 고려하여 염내에서 효과적으로 핵종을 분리할 수 있는 기술개발이 필요하다. 본 연구에서는 공용염내 핵종을 제거하고자 분리매질을 제조하여 selective reaction에 의한 각 핵종의 제거특성을 살펴보고자 하였다. 이를 위해 핵종을 제거 할 수 있는 분리매질로서 analcime(ANA)과 SAP을 제조하여 공용염내에서 각 핵종의 분리특성을 확인하였다.

### 2.실험 및 결과

Cs 제거를 위한 Analcime은 aluminum sulfate, sodium silicate 그리고 tetraethanol amine 등을 혼합한 후 200°C에서 24시간동안 수열합성하여 제조하였다. Sr 제거를 위한 SAP은 TEOS, aluminum chloride와 phosphoric acid를 원료로 하여 sol-gel법으로 합성 후 50°C에서 하루 동안 gel을 형성시키고, 70°C에서 2일간 숙성한 후 110°C에서 건조하며, 650°C에서 열처리한 후에 분쇄하여 제조하였다. 반응실험은 LiCl-KCl 공용염 200g에 CsCl과 SrCl<sub>2</sub>의 농도를 0.5wt%에서 10.0wt%까지 변화시켜 450°C에서 녹인 후, 분리매질 10g을 투입하는 방법으로 실시하였다. 각 핵종의 제거효율을 살펴보기 위해 분리매질을 투입하기전 공용염 시료를 채취하고 반응 종료 직전 공용염 시료를 채취하여 증류수에 녹인 후 AAS로 Cs과 Sr의 농도를 분석하여 비교하였다. 그리고 XRD 분석을 통해 각 매질에 대한 핵종의 반응특성을 살펴보았다.

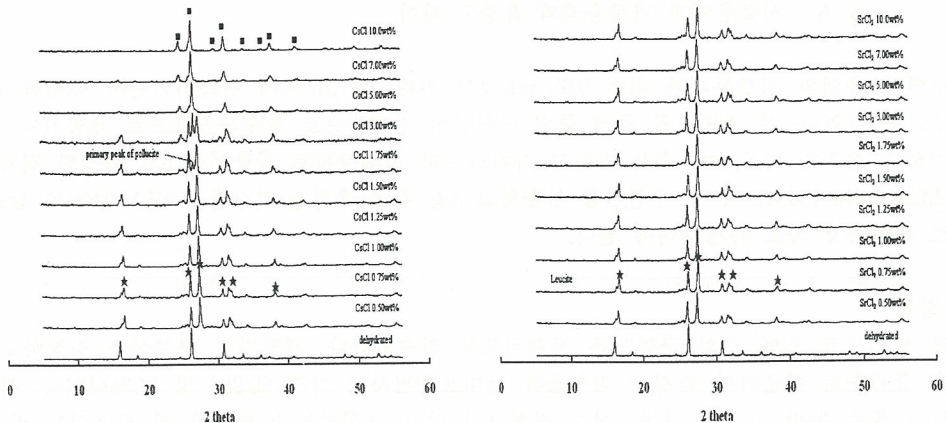


Fig. 1 XRD patterns of products after test at 450°C for 24h.

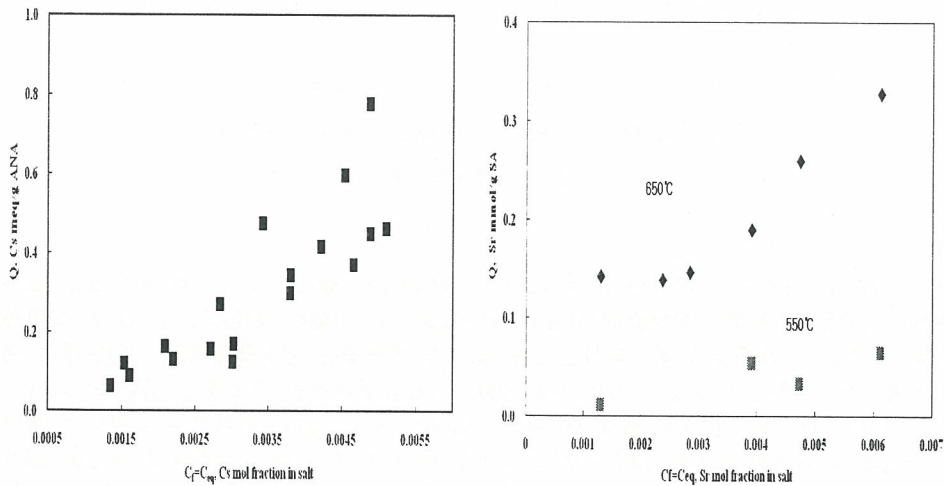


Fig. 2 Cs capacity of ANA with Cs mol fraction and Sr capacity of SAP with Sr mol fraction in molten salt.

Fig. 1에서 볼 수 있듯이, ANA를 이용하여 Cs를 제거할 때 ANA내 Na는 K 또는 Cs로 치환되어 leucite 또는 pollucite로 전환되었으며, 그 반응식은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

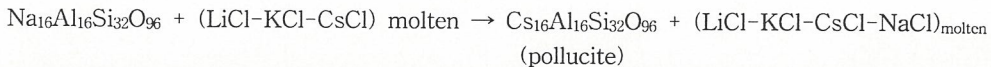
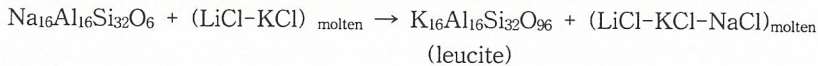


Fig. 1에 따르면, ANA를 투입한 공용융염에서 Cs이 존재하지 않을 때에는 공용융염과 ANA가 반응하여 leucite로 전환되는 것을 알 수 있었고, Cs이 저농도일 때는 leucite와 pollucite가 함께 존재하였으며, Cs의 농도가 높아질수록 leucite가 수화학적으로 안정한 pollucite로 전환되는 것을 알 수 있었다. 또한 Cs mol fraction이 높아질수록 Cs meq/g of ANA 농도가 증가하였다(Fig. 2 참조). 이는 ANA가 LiCl-KCl 공용융염내 Cs와 선택적으로 반응하여 Cs만을 제거할 수 있음 보여주는 근거가 된다. 하지만 ANA 분리매질로는 Sr이 제거되지 않았다.

SAP을 투입한 공용융염에서는 550°C에서 Sr의 제거가 어려웠으나 650°C에서는 Sr mol fraction이 높아질수록 Sr meq/g of SAP 농도가 증가하였으며, 이를 통해 SAP을 이용하여 공용융염내 Sr을 선택적으로 제거할 수 있음을 알 수 있었다(Fig. 2 참조).

### 3. 결론

본 연구에서는 공용융염내 제거대상의 핵종농도를 고려하여 selective reaction을 이용한 방법으로 공용융염내 Cs과 Sr 분리매질을 제조하여 공용융염내 각 핵종의 제거특성을 살펴보았다. Cs는 ANA와 반응하여 수화학적으로 안정한 pollucite 형태로 전환되어 제거됨을 알 수 있었고, Sr은 SAP과 반응하여 공용융염에서 선택적으로 제거될 수 있음을 확인하였다.