

## LiCl - KCl에서 디스크형 Analcime의 상변화와 핵종 제거 특성

강소림, 박환서, 손미숙, 김인태  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150-1  
[solim79@hanmail.net](mailto:solim79@hanmail.net)

### 1.서론

사용후 핵연료내 우라늄 및 초우란 원소의 회수공정으로 연구개발 되고 있는 pyroprocess는 일련의 전기화학적 공정으로 이루어져 있다. 각각의 공정에 따라 LiCl 또는 LiCl-KCl의 전해질을 사용하며, 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, 금속핵연료의 경우 전해환원공정 없이 전해정련공정만을 이용하기 때문에 배출되는 LiCl-KCl 공용염내에는 Cs와 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 있으므로 제올라이트-4A를 이용하여 selective sorption을 통한 핵종 제거는 특정 핵종에 대한 배제효과를 나타내는 단점을 가질 수 있다. 따라서 각 핵종에 대한 각각의 제거 물질을 개발하는 것이 바람직하다. Analcime은 selective reaction에 의해 공용염 내 Cs와 반응하여 수화화적으로 안정한 pollucite로 전환되어 Cs를 선택적으로 제거 한다. 본 연구에서는 공용염과 Analcime의 분리가 용이하도록 Analcime을 디스크 형태로 성형 하여 분말형태의 상변화와 핵종 제거 특성을 비교 평가 하고자 하였다.

### 2.실험 및 결과

Analcime은 aluminum sulfate, sodium metasilicate 를 각각의 증류수에 녹여 준비한다. triethanol amine 을 sodium metasilicate 수용액과 혼합하고, 이 혼합액에 aluminum sulfate 수용액을 천천히 투입하면, 흰색의 물질이 생성 되는데, 이 상태에서 교반시키면서 thickens 한 후, 모두 혼합된 용액을 20 0℃에서 24hr 동안 수열합성 한다. 합성이 끝나면 용기 안에 가라앉은 흰색의 powder를 filtration 후 건조하여 XRD분석으로 Analcime임을 확인 후 실험에 사용하였다. Powder 형태인 Analcime을 Disk형태로 성형하기 위해 sodium silicate 수용액을 적당량 넣은 후 형태를 만들어 건조, 열처리 후에 반응실험에 사용 하였다. 반응실험은 LiCl-KCl 공용염에 CsCl 3.0wt% 에서 10.0wt% 까지 변화하여 450℃에서 녹인 후, 분리매질인 Analcime disk을 투입하는 방법으로 실시하였다. 각 핵종의 제거효율을 살펴보기 위해 분리매질을 투입하기 전 공용염 시료를 채취하고 반응 종료 직전 공용염 시료를 채취하여 증류수에 녹인 후 AAS로 Cs의 농도를 분석하여 비교하였다. 그리고 XRD 분석을 통해 반응특성을 알아보았다.

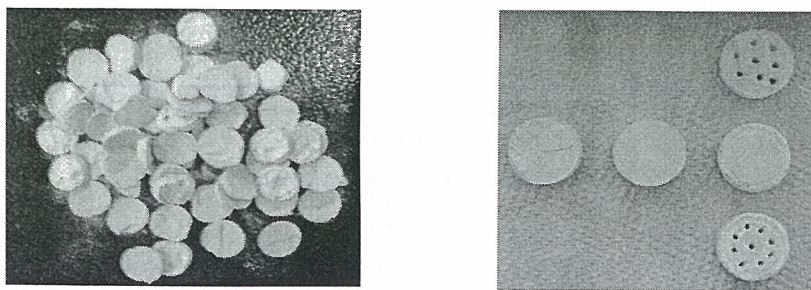


Fig. 1 Analcime 디스크

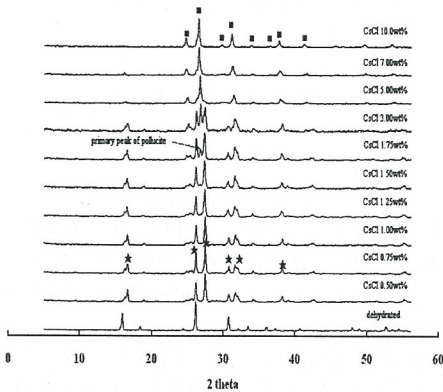


Fig. 2 반응 후 Analcime의 XRD Patterns

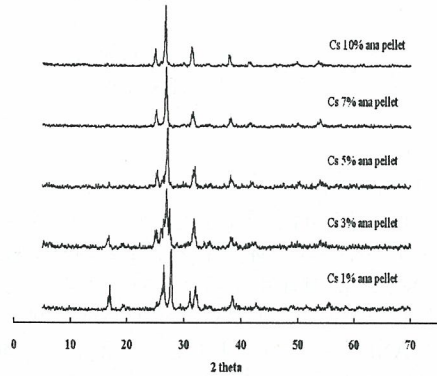
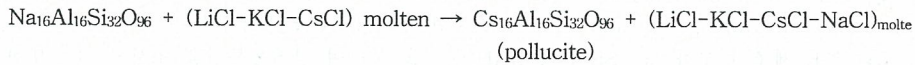
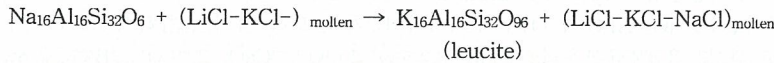


Fig. 3 반응 후 Analcime disk의 XRD Patterns

Fig. 1에서 보여지는 높이 0.5cm, 직경 2cm 의 다공형 디스크와 비다공형 디스크를 제조하여 실험하였는데, 비다공형 디스크의 경우 디스크 내부까지 공용염이 침투하지 못해 반응이 미진한 경우를 대비하여 4-5mm 간격으로 구멍을 내어 구공탄 형태로 제조 하였다. 또한, 두 가지 형태의 디스크와의 반응특성을 비교하기 위해 동일 용량의 매질로 분말형태와 4-5mm 크기의 디스크를 이용한 반응실험을 하였으며 그 결과를 Fig. 2와 3에 나타내었다.

Fig. 2와 3에서 볼 수 있듯이 분말형태의 Analcime과 디스크형태의 Analcime을 이용하여 반응 후의 XRD Patterns을 비교 하였는데 Na가 Cs로 치환되어 pollucite로 전환되었으며, 디스크 형태의 Analcime에서도 같은 결과를 얻을 수 있었다. 반응식은 다음과 같이 나타낼 수 있다.



공용염에 Cs 10wt%로 450℃에서 디스크형 Analcime을 투입 3hr, 7hr, 12hr, 24hr에서 방치하고 각각의 시간에 샘플 채취를 하여 증류수에 녹인 후 AAS로 분석을 하였다. 최종 24hr시간이 지난 후의 농도가 초기 Cs농도 보다 약 32.3%제거가 되는 것을 알 수 있었고, 분말형태의 Analcime 보다 제거 효율이 조금 저하되기는 하나 디스크형 Analcime을 Cs 분리에 사용할 수 있음을 확인 하였다.

### 3.결론

본 연구에서는 공용염내 제거대상의 핵종농도를 고려하여 selective reaction을 이용한 방법으로 Cs를 선택적으로 제거하는 특성을 지닌, 분리매질 Analcime을 공용염과 분리가 용이하도록 disk 형태로 성형한 후의 상변화와 핵종의 제거특성을 살펴보았다. 반응 후에도 Analcime disk는 형태가 흐트러지지 않음을 알 수 있었고, 공용염내 Analcime disk도 분말형태의 Analcime과 마찬가지로 Cs와 반응하여 수화학적으로 안정한 pollucite 형태로 전환되어 핵종이 제거됨을 알 수 있었다.