

Na₂CO₃-H₂O₂ 용액계에서 SIMFUEL의 용해 특성

정동용, 서희승, 이재원, 양한범, 이일희, 박근일, 김광욱

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

ndvchung@kaeri.re.kr

1. 서론

본 연구실에서는 탄산염 매질에서의 사용후핵연료(SF) 용해 및 침전 기술만을 사용하여, SF의 대부분을 차지하는 우라늄만을 선택적으로 분리하여 고준위 폐기물 처분장 능을 증대시킬 수 있고, 핵확산 저항성과 친환경적성을 동시에 가지는 한국 실정에 적합한 습식공정으로 알칼리 탄산염 용액계를 이용한 공정 개발의 가능성을 연구하고 있다. 탄산염 용액계에서 우라늄산화물의 용해는 우라늄 산화상태를 6가로 하면 용해가 잘 일어나는 것으로 알려져 있다. 낮은 용해도와 용해속도는 SF 처리공정 개발에서 제한적인 측면이 될 수 있다. 이를 극복하기 위한 방법의 하나로 산화제를 사용하여 U의 산화가를 증가시키는 데 앞서 연구 결과들을 통해 가장 효과가 좋고 추가 폐기물의 발생을 최소화하는 과산화수소를 산화제로 선택한 바 있다.[1] 공정 개발시 SF로부터 TRU(Transuranium) 핵종과 기타 핵분열생성물(Fission Product)은 불용해시키면서 우라늄만을 용해 침출 시키는 것이 중요하다 그러나 앞서 각 FP 원소들에 대한 용해 실험결과 U 침출과정에서 U과 같이 동반 용해되는 불순물 핵종으로 Cs, Tc, Mo, Te 등이 있었다.[2] 본 연구에서는 앞서의 연구들과 연계하여 모의 사용후핵연료인 SIMFUEL(Simulated Spent Fuel)을 제조하여 탄산염 용액계에서 과산화수소를 산화제로 사용할 때 우라늄과 각 FP들의 용해 정도를 살펴보았다.

2. 실험 및 결과

실험을 위해 U과 FP로서 선정된 기타 원소등 16개 원소들을 포함한 표 1과 같은 조성을 갖는 모의 사용후핵연료 SIMFUEL을 제조하였다. 이때 각 원소비는 농축도 3.2%, 연소도 32,000 MWd/tU를 기준으로 고려한 것이다. 제조 방법을 그림1에 나타내었다. 우라늄산화물(UO_{2,18})과 선정된 각 핵분열생성물 산화물 분말들을 조성에 맞게 혼합한 후 건식으로 attrition 밀링을 하여 균질한 혼합분말을 얻은 후에 이를 100 MPa로 성형하였고, 성형체를 1700°C에서 6시간 동안 4%H₂-Ar분위기에서 소결하였다. 소결체를 막자사발로 분쇄하여 분말화를 하였으며, 산화분말은 500°C에서 5시간 동안 공기분위기에서 제조하였으며, 환원분말은 산화분말을 700°C에서 5시간동안 4%H₂-Ar 분위기에서 제조하였다. 산화분말은 U₃O₈ 형태의 우라늄산화물로 XRD 결과 monoclinic 구조를 가지며 평균입자크기는 5.3µm이고, 환원분말은 UO₂의 우라늄산화물로 cubic 구조를 가지며 평균입자크기는 5.9µm였다.(그림2, 그림3) 이때 기타 FP 원소들은 우라늄에 비해 매우 적은 양으로 우라늄 산화물에 일부가 고정화되어 있을 것으로 추정된다.

일반적으로 탄산염 용액계에서 산화제로 과산화수소를 사용하는 경우 아래와 같은 반응에 의해 uranyl oxocarbonato complex 형태로 용해된다.[3]

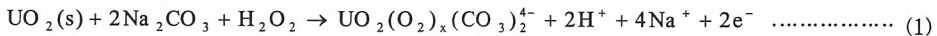


그림 4는 0.5M Na₂CO₃+H₂O₂ 용액 60ml에 산화분말 5g을 넣고 2시간 동안 교반한 후 얻어진 각 원소들의 용해도를 나타낸 것이다. 이때 우라늄의 용해도는 H₂O₂ 1.0M에서 5.4 g/l였고, H₂O₂ 2.0M에서 12.7 g/l 였다. 그림에서 볼 수 있는 바와 같이 Mo가 약간 녹는 것을 확인할 수 있다. 이는 단일 성분일 때 얻어진 Mo의 용해도와 비교하면 다소 낮은 값이나 다른 원소들에 비해 가장 잘 녹는 것을 다시 확인할 수 있었다. 단일 성분에서 얻어진 결과에서 Te이 추가적으로 약간 녹는 것을 확인하였으나, SIMFUEL내에 Te이 있을 때는 거의 녹지 않는 것으로 나타나고 있다. Gd, Zr, Y, Ce, Nd, Ru, Pd 등 대부분의 다른 원소들은 용해되지 않았으나 Ba과 Sr이 아주 미량 녹는 것으로 나타나고 있으나 그 농도는 수 ppm 정도로 낮은 값이다. 그림 5는 환원분말에 대해 같은 실험조건에서 얻어진 실험결과이다. 이때 용해된 U 농도는 H₂O₂ 농도 1.0M일 때 14.8 g/l, 2.0M일 때 31.2 g/l이었다. 우라늄의 용해도는 같은 실험조건에서 산화분말보다 환원분말에서 더 높게 나타나고 있다. 산화분말과 마찬가지로 Mo이 약 100 ppm 녹는 것으로 나타나고 있으며, 산화분말과 비슷하게 기타 원소로서 Sr과 Ba이 수 ppm 용해되는 것으로 나타났다.

3. 결론

U, Mo, Gd, La, Pr, Sm, Eu, Zr, Y, Ce, Nd, Ru, Pd, Ba, Sr 등의 원소들로 구성된 SUMFUEL을 제조하여 탄산염 용액에서 산화제로 과산화수소를 사용하여 SIMFUEL로부터 U 만을 산화용해 침출시 FP 중에서 용해되는 원소들로 Mo, Ba, Sr 등으로 나타났다.

사 사

본 연구는 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국과학재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

참고문헌

- [1]. 정동용 등, 한국방사성폐기물학회 춘계학술대회 논문요약집, 238 (2008).
- [2]. 이일희 등, 한국방사성폐기물학회 춘계학술대회 논문요약집, 270 (2008).
- [3]. S.M. Peper, et al., Ind. Eng. Chem. Res., 43, 8188 (2004).

표 1. SIMFUEL 조성비

원소	산화물형태	조성비 (%)
U	UO _x	96.33
Ce	CeO ₂	1.139
Gd	Gd ₂ O ₃	0.015
La	La ₂ O ₃	0.138
Nd	Nd ₂ O ₃	0.453
Pr	PrO ₂	0.127
Sm	Sm ₂ O ₃	0.095
Eu	Eu ₂ O ₃	0.018
Y	Y ₂ O ₃	0.052
Mo	MoO ₂	0.472
Pd	PdO	0.162
Ru	MoO ₂	0.241
Zr	ZrO ₂	0.409
Ba	BaO	0.212
Sr	SrO	0.087
Te	TeO ₂	0.052
합계		100

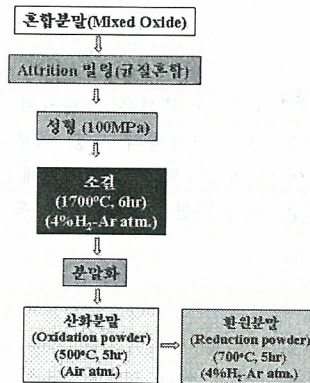


그림 1. SIMFUEL 제조 방법

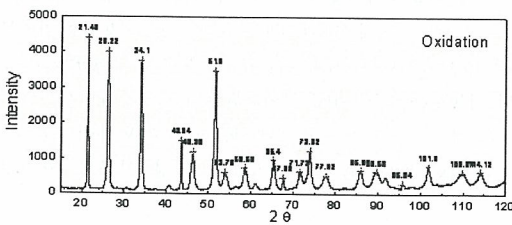


그림 2. 산화분말의 XRD 결과

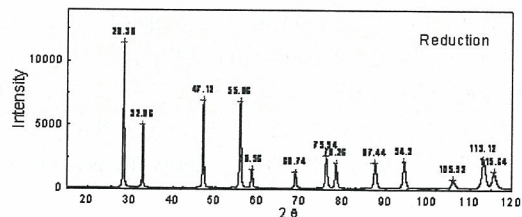


그림 3. 환원분말의 XRD 결과

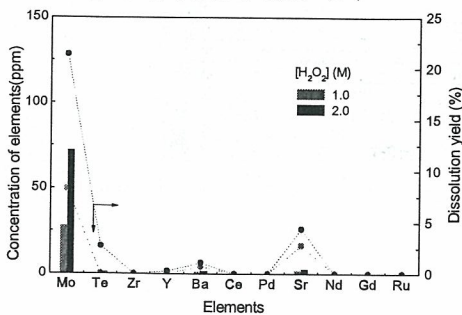


그림 4. SIMFUEL(산화분말)의 용해도

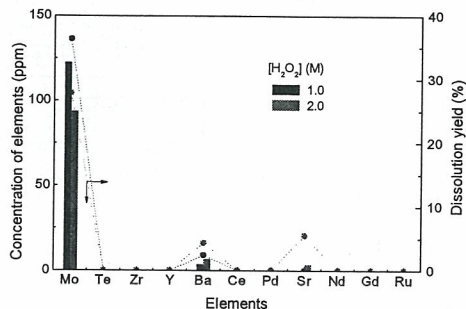


그림 5. SIMFUEL(환원분말)의 용해도