

## COL 공정에서 미용해 잔사물 및 침전물의 고/액 분리특성

양한범, 임재관, 정동용, 이일희, 김광욱  
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150 번지  
[nhbyang@kaeri.re.kr](mailto:nhbyang@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

사용후핵연료를 알카리 탄산염 매질에서 산화용해 - 침출시키면 대부분의 F.P(핵분열생성물) 와 TRU(초우라늄) 원소는 미용해 잔사로 남고 Mo, Cs, Tc(Re), Te 등 몇 개 원소와 U의 용해가 예상된다. 그리고 U 용해액으로부터 침전법으로 사용하여 U 만을 선택적으로 회수할 수 있는 시스템(이하 COL 공정이라 함)을 개발하고 있다.

COL 공정은 핵확산 저항성을 유지하면서 사용후핵연료(SF)의 효율적인 관리 및 재활용할 수 있는 원자력 에너지의 안정적 공급시스템을 구축과 연관된 분리 공정으로서, 이와 관련된 연구는 일부 원자력 선진국에서 수행되고 있는 기초 연구와 한국원자력 연구원의 본 연구팀에서 수행하고 있는 고준위 방사성폐기물의 탄산염 용액에서 산화용해-침전 분리기술에 의한 우라늄 회수에 대한 연구가 있다. PWR 사용후 핵연료중에 함유되어 있는 원소와 함량을 ORIGEN 코드로 계산한 자료에 의하면, 악티나이드 원소(U, Np, Pu, Am)와 핵분열생성물(FP)로 구성되면, FP는 알카리 금속(Cs, Rb), 알카리 토금속(Sr, Ba), 희토류원소(Y, La, Ce, Pr, Nd, Sm), 백금족원소(Ru, Rh, Pd) 및 기타 전이원소(Zr, Mo, Tc, Te)로 이루어져 있으므로, SF중에서 중요한 성분인 12 원소의 FP 및 U을 선정하여 만든 모의 SF를 대상으로 우라늄 및 FP의 산화용해 침출현상, 우라늄과 FP의 분리, 침전제를 사용하여 Cs와 Tc(Re)의 침전 분리 및 우라늄의 고순도 침전 회수의 단위공정에 대한 실험과 사용후핵연료중 탄산염 용액계에서 우라늄만을 선택적으로 용해시킬 때 초우라늄원소(TRU)의 동반 용해 가능성에 대한 확인을 위하여 탄산염 용액계에서 TRU의 용해도 측정실험을 하였다. COL 공정은 침전법을 기본으로 하는 공정이므로 모의 SF를 탄산염용액에 용해시키는 용해 단위공정에서 발생하는 미용해 잔사물, 침전제를 사용하여 Cs와 Tc(Re)의 침전 분리 제거하는 단위공정에서 발생하는 Cs/Re 침전물, U의 고순도 침전 단위공정에서 발생하는  $UO_4$  침전물들을 고/액 분리 하는 공정이 COL 공정에서는 중요한 기술이다. 본 연구에서는 PWR 사용후 핵연료 (초기농축도 3.2%, 연소도 33 GWd/tU, 냉각기간 10년)를 대상으로 하여 Origin 코드로 계산한 각 핵종의 함량을 기본으로 하여, 각 단위공정에서 발생하는 미용해 잔사물 및 침전물에 대한 고/액 분리특성 실험결과를 논하였다.

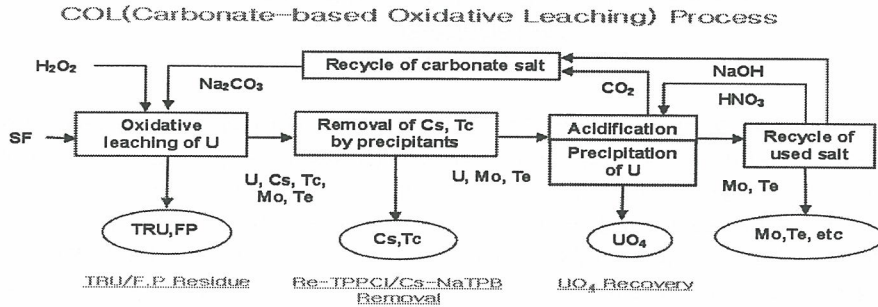
### 2. 실험 방법

미용해 잔사물, 침전물의 여과실험 : 미용해 잔사물 여과실험은 모의 FP-산화물 (Cs, Sr, Ba, La, Ce, Nd, Re, Ru, Pd, Zr, Mo Te)의 12 원소의 시약용 산화물)을 사용하고, RE, Cs 침전물은 각각 TPPCI 과 NaSTPB 침전제로 Re-TPPCI 침전물과 Cs-NaTPB 침전물을 만들었으며,  $UO_4$  침전물은 U-0.5M  $Na_2CO_3$ -1M  $H_2O_2$ 의 알칼리용액(pH > 10)을 4M  $HNO_3$  용액으로 pH=3.6까지 산성화시켜 만든 다음 로터리 진공펌프 (Gast Co.)와 연결된 실험실용 진공여과장치(Fisher Model 09-753-1A)에서 Membrane filter(Millipore Co.)를 사용하여 Ruth의 정압여과계수를 측정하고, 여과물의 고유한 저항계수를 구하여 여과의 난이도를 표시하였다. 모든 침전 및 여과실험은 회분식으로 상온 ( $25 \pm 1$  °C)에서 수행하였으며, U 농도 Arsenazo III를 사용하여 비색법으로 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

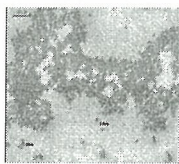
3-1. COL 공정

기본적인 COL 공정 개념은 다음 그림과 같다.

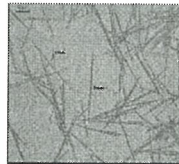


3-2. 미용해 잔사물, UO<sub>4</sub> 침전물, Re-TPPCI 및 Cs-NaSTPB 침전물특성 및 여과특성

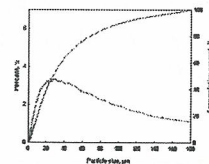
미용해 잔사물, UO<sub>4</sub> 침전물, Re-TPPCI 및 Cs-NaSTPB 침전물 특성중 침전물 형상을 보면 미용해 잔사물, UO<sub>4</sub> 침전물 및 Cs-NaSTPB는 구형이며, Re-TPPCI 침전물은 침상형이었다. UO<sub>4</sub> 침전물, Re-TPPCI 및 Cs-NaSTPB 침전물의 최대 입도 분포 입자크기는 각각 5 $\mu$ m, 30 $\mu$ m 및 15 $\mu$ m로 측정되었다. 미용해 잔사물, UO<sub>4</sub> 침전물, Re-TPPCI 및 Cs-NaSTPB 침전물 고체들의 정압여과 계수를 측정하여 고유 저항계수를 계산한 결과로부터 여과 난이도를 평가한 결과 미용해 잔사물, Re-TPPCI 및 Cs-NaSTPB 침전물의 여과성은 쉽게 여과할 수 있으며, UO<sub>4</sub> 침전물은 이들 고체 침전물중 여과성이 가장 어려운 난이도를 갖는 것으로 평가되었다.



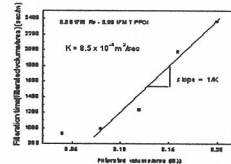
Cs-STPB 형상



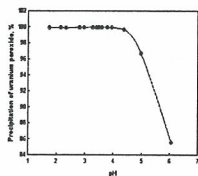
Re-TPPCI 형상



Re-TPPCI 입도분포



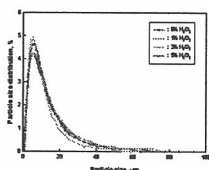
Re-TPPCI의 K 값



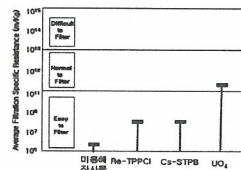
UO<sub>4</sub> 침전율



UO<sub>4</sub> 침전형상



UO<sub>4</sub> 입도분포



여과난이도