

## 5. 핵연료 주기에서의 RTIL 응용: RIAR 개념

### 5.1 서론

상온 이온성 액체(RTIL)는 비수용성이며 상온 근방에서 용매로 사용되는 물질로 RTIL의 주요 물성 중 하나는 현재 광범위하게 사용되는 유기용매와 비교하여 환경 유해성이 낮다는 것이다. 이러한 종류의 용매들의 장점은 작업 온도에서 낮은 증기압과 높은 열적 안정성 및 불연성을 지니고 있다는 것이다. 또한 RTIL은 유기, 무기, 금속-유기물 등의 다양한 조성을 포함하는 넓은 영역에서 대상 물질들을 용매화시킬 수 있기 때문에 높은 용해도를 나타내고 있다. 또한, RTIL은 넓은 전기화학 창과 높은 전기전도도를 특징으로 하고 있기 때문에 이러한 물성을 이용한다면 전기화학 시스템의 용매로 사용될 수 있으며 수용액 시스템을 이용해서는 얻을 수 없는 화학적으로 반응성이 높은 금속 물질을 추출하는 전해 반응에 사용될 수 있다.

핵임계 계산 결과 이온성액체-플루토늄 혼합물의 최소 임계 농도가 수용액 혼합물에 비해 10에서 100배로 나타났다. 따라서 수용액 시스템에 비해 높은 농도의 핵물질을 처리할 수 있는 가능성을 지니고 있다. 그러나 이온성 액체의 산업 규모 공정에 적용은 아직 개발되고 있지 않고 있다.

최근에 RTIL의 핵연료 재처리 기술의 사용이 상당한 가능성을 지니고 있을 것으로 관심을 받고 있다[1-3]. RTIL의 사용으로 핵물질 재처리 기술에서 기술성 및 경제성 향상을 기대할 수 있으며 휘발성 유해 유기 용매의 사용과 관련된 위험성과 방사성 사고에 의한 사고의 위험을 낮출 수 있다.

현재 상업 규모로 사용후핵연료(SNF, spent nuclear fuel) 처리에 적용되는 기본 방식은 PUREX 공정이다. PUREX 공정에서 폐기물/생성물들은 Fig.1과 같은 공정도로 유기 용매를 사용하여 분리된다. 그러나 이 방법과 같이 수용액-유기용매 매질을 이용한 방법은 열중성자를 이용하는 원자력 발전 연료를 위해 개발되었기 때문에 높은 연소도를 갖는 고속로 SNF에 이 기술을 적용하는 것은 상당한 어려움을 나타내고 있다. 우선, 우라늄-플루토늄 혼합 연료에 대한 유기 용매의 낮은 방사성 및 열적 안정성이 PUREX 공정을 고속로 핵주기에 도입하기 어렵게 만든다. 이 경우 장기간의 냉각을 통해 PUREX 공정을 이용할 수 있지만 낮은 경제성과 많은 폐기물을 유발하는 단점이 발생한다. 또 다른 습식 공정의 문제점은 폭발성이 있는 휘발성 유기 용매를 사용하는 데 있다.

그러므로 SNF 재처리의 건식 방법이 현재 습식 방법의 대안으로 개발되고 있으며 불화물 휘발법과 용융염 방법이 현재 가장 중점적으로 개발되고 있다. 건식 방법은 습식 방법에 비해 높은 연소도와 적은 냉각 기간의 사용후핵연료를 처리할 수 있는 장점이 있으며 높은 핵확산 저항성과 공정의 단순함 등에서 더욱 유리하다.

핵물질 재처리에 있어 RTIL의 사용은 휘발성 유해 유기 용매의 사용과 관련된 위험성을 제거시키는 한편 공정 온도가 상온 근처이기 때문에 주요 장치의 내구성을 증대시킴과 동시에 방사능에 의한 사고 위험을 낮추는 측면에서 습식과 건식 공정을 향상시키는 대안이 될

수 있다. RTIL의 적용으로 사용후핵연료 재처리에서 기술성 및 경제성이 향상되며 공정이 더욱 안정적이 될 것으로 기대할 수 있다.

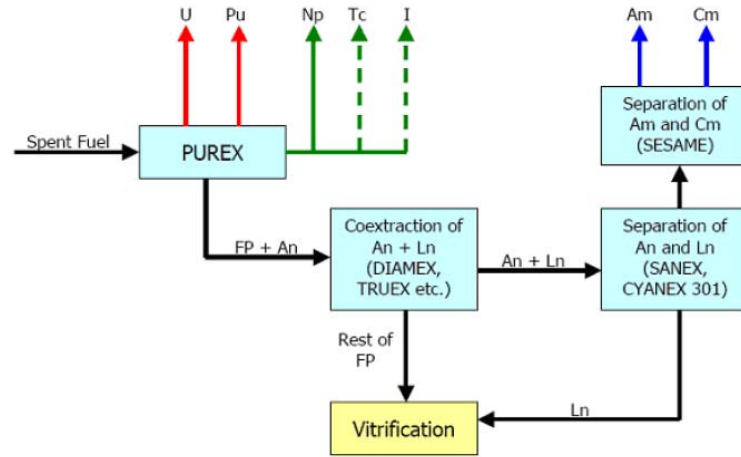


Fig.5.1. Typical Flowsheet of Industrial SNF Reprocessing by the Hydrochemical Methods.

## 5.2 R&D 프로그램

러시아의 RIAR 연구소에서는 국제 공동 연구와 자체 연구 프로그램을 통하여 연료 물질 재처리와 무기급 플루토늄 처분을 위한 RTIL의 사용을 위한 연구를 수행해왔다. 특히, EtMeIm-Tf<sub>2</sub>N 형태의 이온성 액체에서 우라늄과 갈륨의 거동에 대한 연구가 중점 수행되었다[4-8].

현재 RIAR는 원자로 선진 연료 주기 개념 하에서 연료 물질 재처리의 새로운 공정에서 RTIL의 사용과 연관된 다양한 연구 프로그램을 시행하고 있다. 초기 연구는 (1) U-Al의 다양한 조성에서 재처리로 순수한 우라늄을 추출하는 연구와 (2) PUREX 공정의 액체 폐기물로부터 희토류 원소들과 마이너 악티나이드들을 분리하는 연구에 초점이 맞추어져 있다.

### 5.2.1. RTIL을 사용한 U-Al 연료 재처리

몇몇 발전용 원자로와 대부분의 연구로는 U-Al을 연료로 사용하여 가동되고 있다. 전세계 약 283개의 연구로 중 절반 정도는 농축된 우라늄(20에서 93% 농축)으로 제작된 U-Al을 연료로 사용한다. U-Al 연료의 조성은 다양하며 형태 또한 U-Al 합금과 알루미늄 매트릭스에 산화우라늄을 분산시킨 것과 같이 다양하다. 이와 같은 연료 형태는 RTIL과 같은 새로운 전해질을 이용한 전기화학적 분리 방법으로 처리할 수 있다.

RTIL 응용 기술은 잠재적으로 우라늄-플루토늄 연료 재처리에 적용될 수 있다. 이와 같은 기술 적용가능성은 다양한 금속과 함께 있는 시스템에서 알루미늄 합금의 생산과 알루미늄 전해정련 기술에 RTIL을 사용한 결과[9]로부터 기대되고 있다. 또한, 이온성 액체-알루미늄 할라이드 시스템에서 분열생성물, 란타나이드, 악티나이드들을 포함하는 다양한 원소

들의 물리-화학적 물성들에 대한 다양한 연구 결과가 발표[10-12]되고 있다.

Fig.5.2의 환원 전위 그림과 같이 금속 우라늄의 환원 전위는 이온성액체-AlCl<sub>3</sub>의 전기화학 창에 포함되지 않는다. 기초 연구 결과 이와 같은 시스템에서 우라늄과 알루미늄의 어떠한 종류의 연료 형태에서도 알루미늄은 우라늄과 다른 악티나이드들에 의한 오염 없이 금속 형태로 추출될 수 있으며 공정의 전해전착 회수물들은 Rh, Rh, Pd, Mo, Tc, Te, Zr을 포함하고 있는 것으로 나타났다. 잔류하고 있는 우라늄을 RTIL로부터 추출하기 위해서는 산성 수용액과 같은 다른 방법이 도입되어야하므로 최종적인 우라늄의 추출은 PUREX 방법으로 가능하다. 새로운 추출 공정의 개발은 전통적인 유기 매질을 RTIL로 대체하는 것을 가능하게 하며 잠재적인 U-Al 연료 재처리 공정 흐름도는 Fig.5.3과 같다.

RTIL계에서 우라늄과 알루미늄 분리의 연구 프로그램은 최적 물성을 지닌 이온성 액체의 선택과 선택된 RTIL에서 Cl<sup>-</sup>, F<sup>-</sup>, CN<sup>-</sup> 등의 음이온에 대한 U-Al 연료의 용해도 분석 및 전해 과정 동안 물질들의 전극 거동 규명을 위해 진행되고 있다.

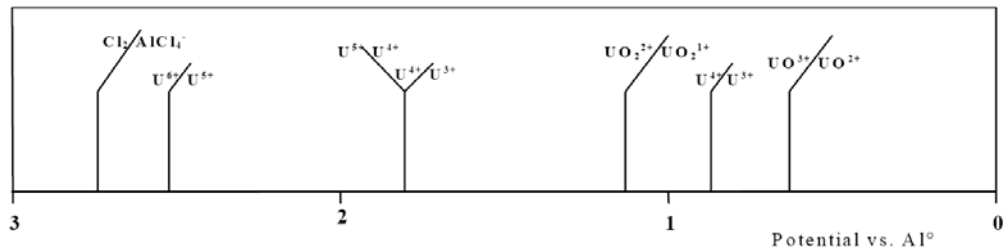


Fig.5.2. Redox Potentials of Valence Uranium Forms in Molten EMIC-AlCl<sub>3</sub>.

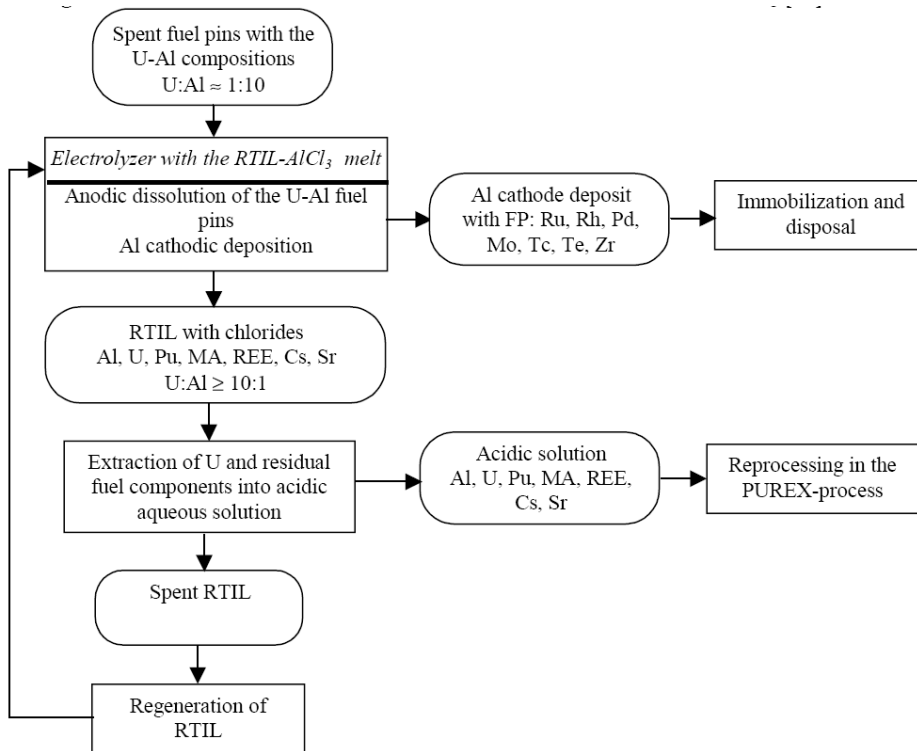


Fig.5.3. Basic Flowsheet of the U-Al Fuel Reprocessing Using RTILs.

### 5.2.2. PUREX 공정 액체 폐기물에서 TPE와 REE 분리

현재 PUREX 공정 산성 액체 폐기물로부터 추출에 의해 마이너 악티나이드들과 희토류 원소들(REE)을 분리하는 방법은 dithionic-phosphinic산(CYANEX-301, SANEX-IV 공정)에 기반하는 PA 형태의 추출제를 사용하는 방법과 질소를 포함하고 있는 heterocycles (SANEX-III 공정) 계열의 N 형태의 추출제를 사용하는 공정이 가장 높은 수준으로 개발되어 있다. 그러나 이 추출제들의 단점은 매우 고가라는 것과 낮은 산성 용액에서만 TPU를 추출할 수 있다는 것이다. 또한 이들은 공기와 HNO<sub>3</sub>에 의해 산화되며 방사성 분해에 안정적이지 못하다는 단점 역시 지니고 있다.

RTIL를 이용한 SNF 재처리를 위한 연구[1-2]로부터 TPE(Transplutonium element)와 REE 분리를 위한 연구의 방향은 다음과 같이 설정되었다.

- RTIL를 검증된 추출제 용매로의 사용 가능성.
- 4f-와 5f- 원소들의 coordination 화학과 관련된 특정 물성을 지니는 새로운 RTIL의 합성.
- 전기화학적 방법을 활용한 4f- 및 5f- 원소들의 분리.

### 5.3 결론

현재 원자력 발전에 대한 규제는 안전, 핵비확산성, 방사성폐기물의 최소화와 같이 수준이 높아지고 있다. 따라서 새로운 공정 기술에 기반하는 핵연료주기의 접근이 요구되고 있다. 이와 같은 노력의 일환으로 RTIL를 이용하는 공정들은 가능성을 지니고 있으며 수용액-유기 용매를 대체하여 습식 공정에 적용이 가능하며 전기화학적 공정의 매질로 사용되어 건식 공정 개발에 이용 가능할 것이 예상된다. 따라서 현재 산업적 규모 공정 개발을 목표로 U-AI 핵연료의 재처리와 PUREX 공정의 액체 폐기물 처리 등과 같은 적용이 가시적인 연구를 RIAR에서는 수행하고 있다.

### 참고문헌

1. Ensor, Dale D., Ensor, Ginger K., and Ensor, Melissa A. Abstracts of Papers, 223rd ACS National Meeting, Orlando, FL, United States, April 7-11, 2002.
2. Roger, R.D., Holbrey, J.D., Spear, S.K., Gutowski, K.E., Bridges, N.J., Cocalia, Violina A., and Swatloski, R.P. Abstracts of Papers 226th ACS National Meeting, New York, NY, United States, September 7-11, 2003.
3. Ionic Liquids in the Nuclear Industry: Solutions for the Nuclear Cycle; W.R. Pitner, A.E. Bradley, D.W. Rooney, D. Sanders, K.R. Seddon, R.C. Thied, J.E. Hatter.
4. Smolenski V.V., Khokhriakov A.A., Bovet A.L., Ossipenko A.G., Proc. Conf. Plutonium Future - The Science, Albuquerque, NM, USA, July 6-10, 2003, pp.321-323.

5. Smolenski V.V., Khokhriakov A.A., Bovet A.L., Ossipenko A.G., *Radiochemistry, Russia*, V.45, iss.5, pp.449-452.
6. Smolenski V.V., Khokhriakov A.A., Bovet A.L., Ossipenko A.G., *International Symposium on Ionic Liquids in Honour of Marcelle Gaune-Escard, France, Carry le Rouet, June 27, 2003*, pp.115-122.
7. Ossipenko A.G., Poglyad S.S., Mayorshin A.A. *J. Bulletin of UGTU-UPI, Russia*, 2004, p.114.
8. Smolenski V.V., Bovet A.L., Borodina N.P., Bychkov A.V., Osipenko A.G. *Radiochemistry, Russia*, 2004, v.46, pp.536-539.
9. Kamavaram V., Mantha D., Reddy R.G., *Jouranl of Mining and Metallurgy*, 39 (1-2)B, 2003 pp.43-58.
10. Actinide Chemistry in Novel Solvent Media: Room Temperature Ionic Liquids, A.E. Visser, and R.D. Roggers, *Proc. 13th Int. Symposium on Molten Salts, USA, PA, Philadelphia, 2002*.
11. Schoebrechts J.P., and Gilbert B., *Inorganic Chemistry*, 24, 1985, pp.2105-2110.
12. Anderson C.J., Choppin G.R., Pruett D.J., *Radiochim. Acta*, 84, 1999, pp.21-36.