

## 우라늄의 건식전해정련 연구

### A Study on the Electrorefining of Uranium

강영호, 황성찬, 김응호, 유재형  
한국원자력연구소

#### 요 약

본 연구는 건식 용융염 전해정련실험에서 고체음극에 순수 우라늄금속 전착되는 최적조건을 얻기 위한 내용이다. 실험 결과, 용융염(LiCl-KCl)중  $UCl_3$ 의 농도가 2wt%이상이 존재할 때 고체음극에 순수한 우라늄이 전착됨을 알았다. 또한, 전착물중 전류밀도와 용융염중 U의 함량이 미치는 영향과 우라늄의 형태에 관한 연구가 수행되었다.

#### Abstract

The present study focused on obtaining the optimum conditions for depositing pure uranium onto a solid cathode. As for the results of the experiments, it was conformed that when the concentration of  $UCl_3$  in the molten salt(LiCl-KCl) is more than 2wt%, pure uranium could be deposited onto a solid cathode, In addition. the effect of both the current density and the U contents in the molten salt or th ratio of uranium to salt was examined and the uranium morphology was also investigated.

#### 1. 서 론

비 핵확산성 핵연료주기를 개발하기 위한 고온건식공정은 1997년 이래 지속되어 왔다. 고온건식공정을 구성하는 공정중 사용후 산화물핵연료로부터 우라늄과 TRU를 회수하기 위한 전해정련은 가장 중요한 공정이다. 일반적으로 전해정련은 알콘 분위기에서 500°C로 용해되어 있는 액체카드뮴위에 위치한 용융염화물(LiCl-KCl) 전해질을 포함하는 전해조에서 수행된다[1,2]. Figure 1에서 볼 수 있는바와 같이 다공성 basket에 절단된 사용후 연료를 담아 양극으로 하면 사용후 핵연료에 함유되어 있는 우라늄, 플루토늄과 기타 악티나이드류가 산화된다. 그러면 산화된 우라늄은 고체음극으로, U-TRU혼합물은 액체카드뮴으로 전기적으로 이동된다. 이 경우 산화된 알칼리금속, 알칼리토금속과 같은 비금속 핵분열물질은 용융염전해질에 남게 되고, 루테튬, 팔라듐같은 귀금속은 양극 basket에 남게 되거나 카드뮴욕으로 떨어진다. 전해정련에서 우라늄은 사용후 핵연료에 95wt%이상 함유되어 있기 때 문에 매우 중요한 의미를 가진다.

본 연구에서는 고체음극에 우라늄을 효과적으로 전착시킬 수 있는 조건에 대한 연구가 수행되었다.

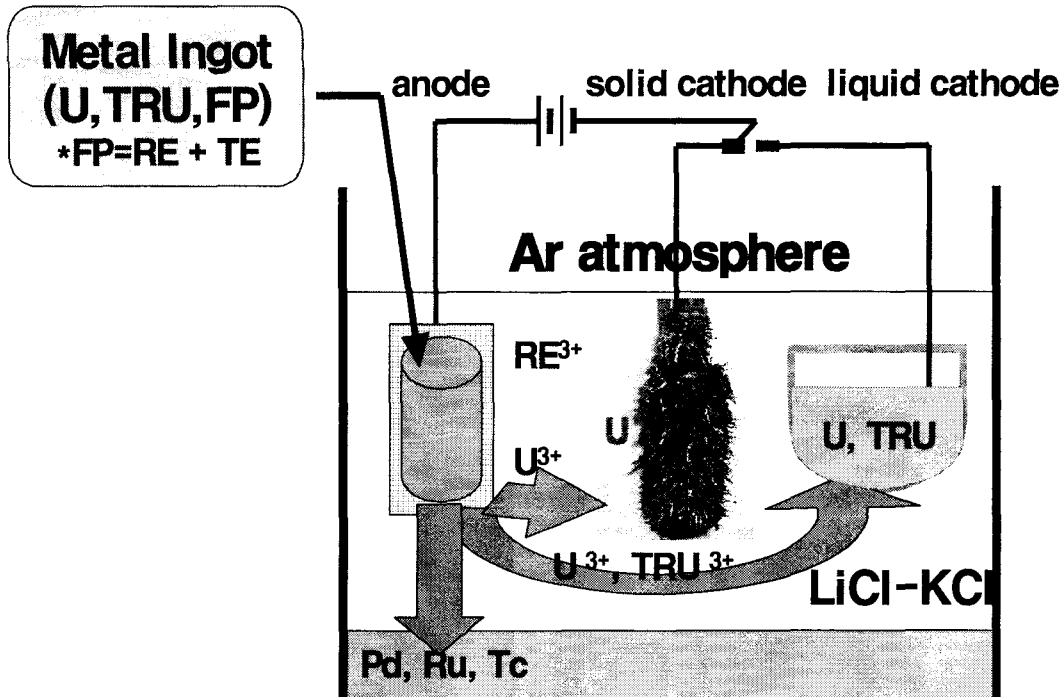
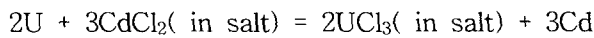


Figure 1. Schematic Diagram of Electrorefiner

## 2. 실험

전해정련실험장치는 내경 15cm, 높이 20cm의 크기이며, 저 탄소강으로 제작되었다. 장치는 Figure 1과 같이 500℃의 LiCl-KCl공용염과 용융액체카드뮴이 담겨져 있다. 전해정련실험중 용융염을 균일하게 유지시켜 주기 위하여 약 70rpm정도로 교 반하여 주었으며 고체음극은 최적 전착 조건을 알아내기 위하여 0~30rpm 범위내에서 회전시켜 주었다. 우라늄의 전착을 위해서는 전해 실험을 수행하기 전해 일정한 농도의 UCl<sub>3</sub>가 포함되게 해주어야 한다. 용융염에 UCl<sub>3</sub>가 용해되어 있게 하기 위해서는 용융염에 CdCl<sub>2</sub>를 넣어 우라늄 금속을 산화(염화)시켜 주어야 한다.

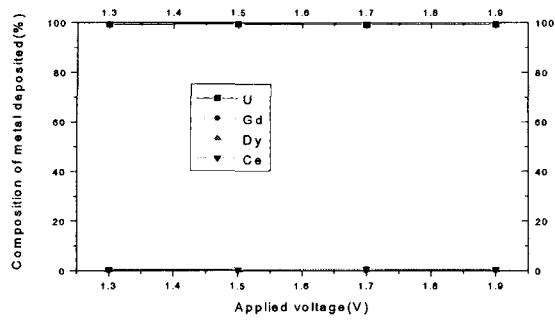


용융염중 UCl<sub>3</sub>의 농도는 용융염에 가하는 CdCl<sub>2</sub>의 양으로 조절하여 2wt%~9wt%로 하였으며 Gadolinium, Dysprosium, Cerium의 염화물도 같은 방법으로 산화시켜 총 3wt%가 되게 하였다. 상기의 반응에 의해 생성된 카드뮴은 반응기의 하부에 담겨 있는 Cd욕에 떨어진다.

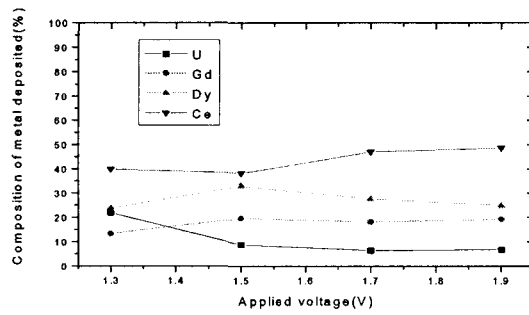
## 3. 결과 및 토의

Figure 2에는 용융염중 UCl<sub>3</sub>의 농도 변화에 따라 고체음극의 전착물의 조성을 나타냈다. 그림의 위 그림은 용융염중 높은 우라늄의 농도에서는 전 인가전압범위에서 고체음극에 전착된 금속 성분중 대부분 순수한 금속우라늄인 반면 아래 그림의 낮은 우라늄 농도(0.3wt%)에서는 Gd, Dy,

Ce등이 우라늄과 같이 전착되었다.



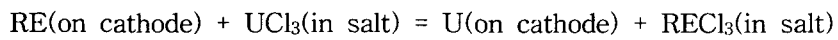
(5.6 wt%U)



(0.3 wt%U)

Figure 2. Concentration of Metals deposited on the Solid Cathode

따라서 고체음극에 순수한 우라늄만 전착시키기 위해서는 용융염중 우라늄의 농도가 일정한 농도이상을 유지해 주어야 한다. Figure 3은 우라늄의 농도변화에 따른 희토류와의 분리계수를 계산한 것으로 금속우라늄의 함량이 99wt%이상인 전착물을 얻기 위해서는 우라늄의 농도가 2wt% 이상이 되도록 유지시켜 주어야 한다는 것을 알 수 있었다. 이러한 현상은 다음의 식에서 설명이 가능하다.



즉, 염화희토류의 분해전압이 염화우라늄보다 높기 때문에 희토류성분이 고체음극에 전착된다 할지라도 용융염중의 우라늄에 의해서 쉽게 치환되기 때문이다.

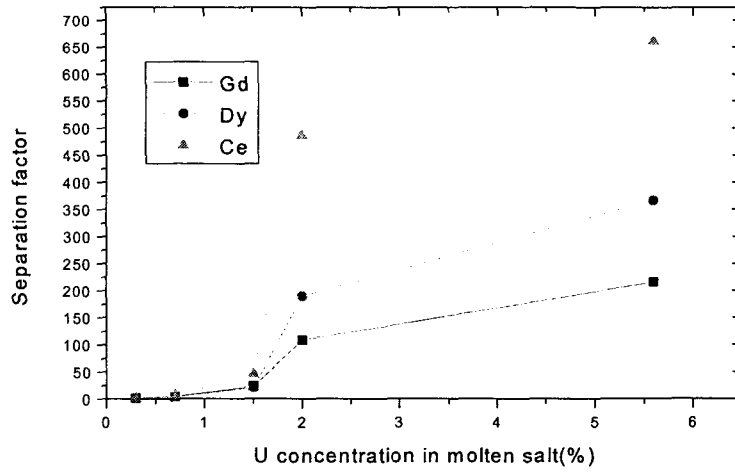


Figure 3. Separation factor of each element with uranium

Figure 4는 전류밀도 변화에 따라서 우라늄금속과 더불어 붙은 염의 함량을 보여 주고 있다. 전류 밀도가 증가하고, 용융염중 우라늄의 농도가 감소함에 따라 고체음극에 달라붙은 염의 함량은 증가하였다. 또한 우라늄의 형태도 이러한 전류밀도의 변화에 의해 변화하였는데, 고체음극에 전착되는 우라늄 금속의 크기는 Figure 5와 같이 전류밀도가 증가함에 따라 감소하는 경향을 나타내었다.

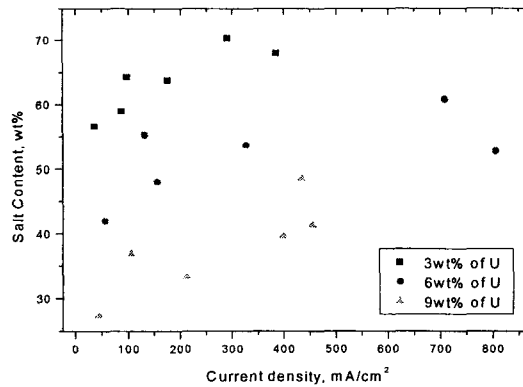


Figure 4. Salt concentration in the deposits with a variation of operation condition

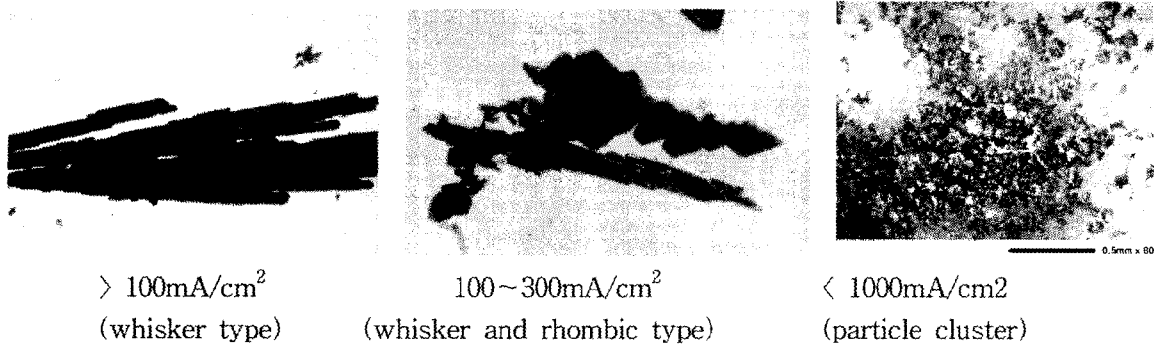


Figure 5. Typical dendrite structure with current density

그러한 우라늄 전착물 구조의 금속형태의 변화는 밀도에 큰 영향을 주어 우라늄 금속을 회수하는 장치의 설계등에 큰 영향을 미칠 것이다.

1. Z. Tomczuk, J. P. Ackerman, R. D. Wolson and W. E. Miller, J. Electrochem. Soc., 139(12), 3523(1992)
2. T. Koyama, R. Fujita, M. Iizuka, Y. Sumida, Nucl. Tech. 110, 357(1995).