

Li₂O 및 산소가 미세 우라늄 금속분말의 용융에 미치는 영향 평가

허진목, 서중석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

imhur@kaeri.re.kr

한국원자력연구원에서는 LWR 사용후핵연료의 처분성을 향상시키는 한편, 사용후핵연료에 남아 있는 가용한 에너지 자원을 금속핵연료 주기에 순환시킬 수 있는 건식공정을 1997년 이후 중점적으로 개발해 오고 있다. 그 주요 단위공정으로는 Voloxidation, Electrochemical Reduction, Electrorefining, Cathode Processing, Electrowinning 등이 있는데, Electrochemical Reduction 과정에서 회수된 환원전극 생성물의 주요 성분은 미세 우라늄 금속분말, LiCl-Li₂O 잔류염, 그리고 Li 금속이다. 그런데 한국원자력연구원에서 개발하고 있는 고용량 연속식 Electrorefiner의 장치 개념에 따르면, Electrochemical reduction 공정의 환원전극 생성물은 금속 잉곳 형태로 Electrorefiner의 산화전극 basket에 이송된 다음, LiCl-KCl 공용융염계에서 전해정련 하도록 되어 있다. 따라서, Smelting 공정이라고 일컬어지는 부가 공정에 의하여 Electrochemical Reduction 공정에서 회수된 환원전극 생성물로부터 잔류염 및 Li는 분리되고, 우라늄 미세 금속분말 등의 금속 성분은 잉곳 형태로 집합되어야만 한다.

본 연구에서는 LiCl-Li₂O 잔류염 및 산소가 우라늄 금속분말의 용융에 미치는 영향을 열역학적으로 분석하고 이를 실험적으로 검증하는 과정을 수행하였다. 잔류염 중에서는 Li₂O가 우라늄 미세분말의 산화를 초래하는 것으로 밝혀졌으며, 이를 최소화 시킬 수 있는 우라늄 용융 온도영역이 제시되었다. 산소의 경우에는 산소에 의한 이산화우라늄 산화막이 우라늄 금속분말의 용융 온도에 미치는 영향과 함께, 산소압력, 온도, 우라늄에 녹아있는 산소 농도 사이의 관계식을 열역학적 분석을 통하여 도출하였다.

이론적으로 도출한 우라늄 금속분말 용융 방법을 실험적으로 구현하기 위하여, 본 연구에서는 우라늄 잉곳을 제조하기 위해 일반적으로 사용되고 있는 기존의 Cathode Processing과 차별화되는 두 가지 방법을 도입하였다. 이는 용융 반응기로 closed vessel을 사용하는 것과, 분말의 consolidation을 위하여 Li 금속을 첨가하는 것이다. Closed vessel의 경우, 염의 진공 휘발을 고려할 필요가 없으므로 용융시스템이 상대적으로 단순해지는 장점이 있으나, 이 경우 염은 확산 휘발되고, 일부 dross로 남는 염은 잉곳으로부터 잘라서 분리해 내어야 한다. Li 금속은 그 자체로 환원제로서의 기능도 가지고 있으나, 본 용융시스템에서는 우라늄 금속분말의 표면에 존재하는 산화막을 파괴하여 용융단계에서 금속분말이 용이하게 응집되도록 하는 역할을 주로 수행하는 것으로 나타났다.

U₃O₈ 금속분말을 650 °C LiCl-Li₂O 용융염에서 Electrochemical Reduction 시켜 제조한 시료를 대상으로, closed vessel 이용 및 Li 첨가가 미세 우라늄 금속분말의 용융에 미치는 긍정적 영향을 확인할 수 있었다. Closed vessel의 가압 밀폐 조건에서 용융/응고하여 제조한 금속 응집체의 물 성분분석이 이루어졌으며, 아울러 Li 첨가에 따른 dross 조성 변화에 대해서도 논해졌다. 이러한 Lab-scale 연구결과의 scale-up 장치로의 적용을 위해서는 vessel 및 crucible의 재료, 용융온도 및 시간의 최적화, 금속분말 중 잔류염 (특히, Li₂O) 양에 대한 제한 조건 설정, 여타 금속성분의 용융 및 잉곳에의 잔류 거동 등에 대한 후속 연구가 집중적으로 수행되어야 할 것이다.