

## 지르코늄 산화물의 고온 용융염 전해환원

박병홍, 이일우, 서중석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)

[bhpark@kaeri.re.kr](mailto:bhpark@kaeri.re.kr)

고온 용융  $\text{LiCl-Li}_2\text{O}$ 계에서 전기화학적 반응을 이용한 전해환원 공정은 산화물 사용후핵연료의 금속전환을 위해 개발되어 왔다. 이와 같은 건식공정 개발은 최근 활발히 진행되고 있으며 부피 저감과 고방열성 핵종제거 등 산화물 사용후핵연료를 금속으로 전환시키는 목적과 장점은 이전 연구들에서 충분히 기술되어 있다. 사용후핵연료는 다양한 균의 화학종으로 구성되어 있다. 크게 우라늄과 TRU, 희토류, 귀금속류, 휘발성 핵종 및 알칼리와 알칼리토금속들로 구분할 수 있다. 현재까지는 공정 실용화를 위해 이와 같은 다양한 종류에 대한 전해환원 거동에 대한 연구는 관심 화학종인 우라늄과 희토류 등에 국한되어 왔다. 이에 비해 귀금속류에 대한 전해환원 거동에 대한 연구는 부족한 실정이다.

귀금속 산화물들은  $\text{LiCl-Li}_2\text{O}$ 계에서 Li과의 반응에 의해 금속으로 전환되는 것으로 알려져 있다. 그러나 실험적으로  $\text{LiCl-Li}_2\text{O}$ 계에서 귀금속 산화물들을 금속으로 전환시키는 연구는 수행되지 않았다. 사용후핵연료 중 귀금속 핵종은 Zr, Sn, Mo, Ru, Pd 등이 존재하며 이중 Zr의 양이 가장 많으며 Mo, Ru, Pd이 뒤를 잇고 있다. 본 연구에서는 사용후핵연료 내 귀금속 중 가장 많은 부분을 차지하는  $\text{ZrO}_2$ 를 대상으로 650 °C의  $\text{LiCl-3wt\% Li}_2\text{O}$  용융염에서 전해환원 반응성을 실험적으로 측정하였다.

전해환원 거동 측정에 앞서 대상 산화물의 용융염에 대한 안정성을 판단하기 위하여  $\text{ZrO}_2$ 의  $\text{LiCl-3wt\% Li}_2\text{O}$ 에 대한 용해도가 측정되었으며 시간에 따른 용융염상의 Zr 농도 분석 결과  $\text{ZrO}_2$ 는 공정 용융염에 대해 용해되지 않는 것으로 나타났다. 일체형 음극인 다공성 마그네시아에  $\text{ZrO}_2$  분말을 충전하여 순환주사법의 전기화학적 실험 방법을 이용하여  $\text{ZrO}_2$ 의 전해환원 전위를 측정하였으며 Li 금속 생성 전위에서 정전류 조건 하에  $\text{ZrO}_2$ 의 전해환원 실험을 수행하였다. 회수된 환원물에서의 산소 조성은 기체 분석기를 통해 이루어졌으며 XRD 분석 결과 일부 Zr-Li-O 화합물이 검출되었다. 일체형 음극에서 회수된 금속전환체 내의 산소 함량은 공급전하량이 적은 경우 감소하다 공급전하량이 증가하는 경우 다시 증가하는 거동을 나타내고 있다. 이는 일체형 마그네시아 내의  $\text{Li}_2\text{O}$  농도 증가에 의해 환원된 Zr이 다시 산화되는 것으로 판단된다. 따라서  $\text{ZrO}_2$ 을 금속으로 전화시키기 위해서는 일체형 음극 내의 산소 이온의 농도가 낮은 상태로 유지되어야 한다.