건식 전해정련을 위한 UCl_3 제조 장치 및 방법

우문식, 강희석, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

mswoo@karei.re.kr

한국원자력연구원에서는 장수명핵종을 소멸처리하기 위하여 사용후 핵연료로부터 전해정련장치를 이용하여 우라늄 및 TRU을 회수하는 기술을 90년대 중반부터 개발하고 있다. 전해정련을 위하여 사용되는 LiCl-KCl 용융염은 500℃로 가열하여 사용하며, 초기 전해조의 Cell 전위의 안정성(stabilization)을 유지하기 위하여 salt내에 9wt% UCl_3가 필요하다. 현재 한국원자력연구원에서는 1kg-U/batch의 전해정련장치 및 석출물회수 장치를 제작하여 실증실험을 완료하였다. 실증장치에 사용된 UCl_3의 제조는 반응기 salt층에서 직접 U 금속과 $CdCl_2$를 반응시켰다. 그러나 공학규모의 전해정련장치에 공급될 UCl_3의 경우 다량이 필요하게 되며, 기존의 제조방법으로는 많은 Cd 금속 폐기물이 발생하게 된다. 본 연구에서는 UCl_3제조 반응기에서 염소(Cl_2)가스와 Cd 금속 간 기-액 반응을 시켜 $CdCl_2$를 제조하고, 제조된 $CdCl_2$와 U 금속 간 반응으로 UCl_3를 제조하였다. 즉 UCl_3 제조 반응식은 다음과 같다.

- Cd 층 반응식 : $Cd + Cl_2 \rightarrow CdCl_2$
- Salt 층 반응식 : $3CdCl_2 + 2U \rightarrow 3Cd + 2UCl_3$

UCl_3 제조장치의 구성은 그림1과 같이 Cl_2가스 발생장치, UCl_3 제조 반응기(반응기 ID 8.5 x H 25cm), 배기체 가스 흡수장치, 염소가스 측정 장치 등으로 구성되어있다.

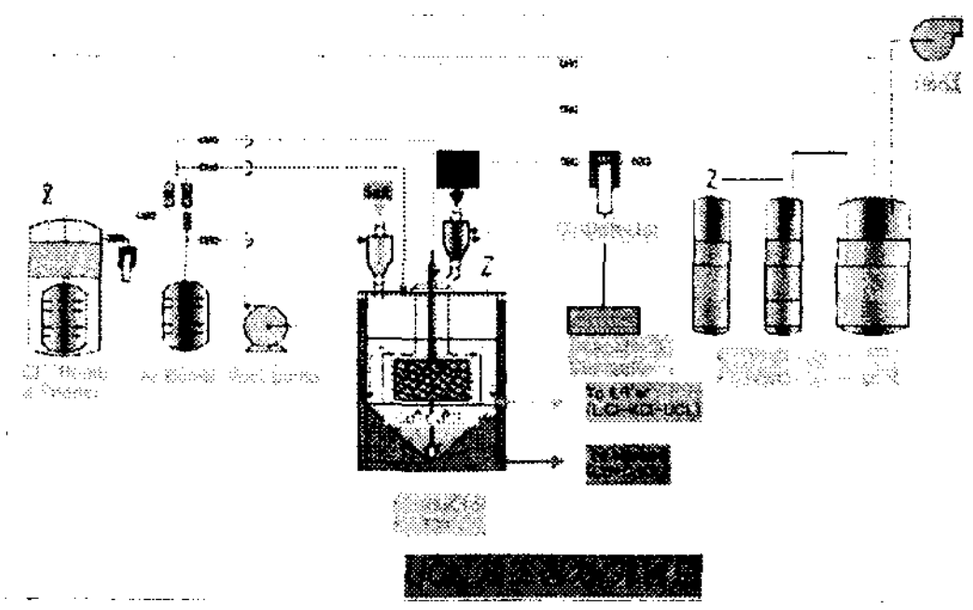

그림 1 UCl_3 제조장치 개념도

UCl_3제조 실험은 LiCl- KCl (41:59mol%) 716g, Cd:789g, U 1.349g을 600℃에서 Cl_2 가스 공급속도를 12.7m/min로 6시간 반응시켜 제조하였다. 제조 실험결과 염소가스 공급장치의 노즐(nozzle) 끝단(tip)의 막힘 현상이 자주 발생하였다. 그 원인은 그림2의 열역학적 자료에서 알 수 있듯이 염소가스 공급시 노즐 끝단에서 염소가스에 불순물로 포함된 산소(O_2)와 Cd층의 Cd간 반응으로 CdO를 생성함으로서 노즐의 끝단을 막는 것으로 확인하였다. 그리고 순수한 UCl_3를 제조하기 위하여 염소가스의 공급량은 화학량론적으로 적게 공급할 필요가 있으며, 사용된 염소가스 공급노즐은 SUS 316인 경우 부식이 심하였고, quartz의 경우 내부식성이 강하였다. 제조된 시료를 XRD 분석한 결과 그림3과 같이 UCl_3임을 확인하였다.

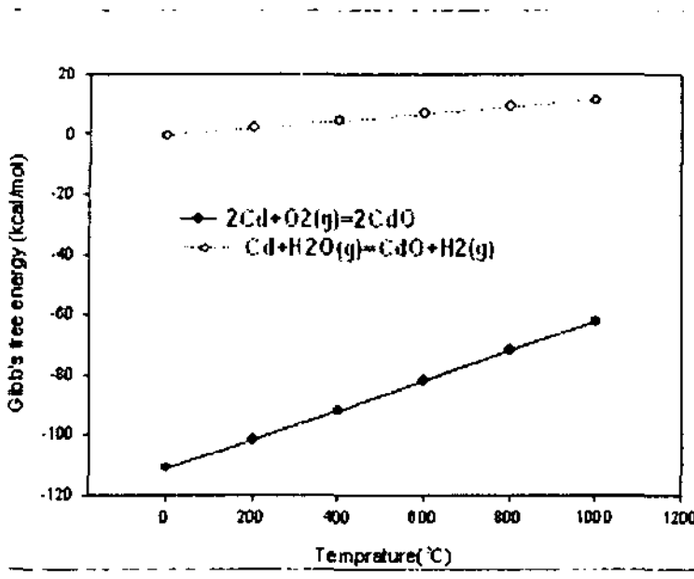

그림 2 Cd의 산소 및 수분에 대한 Gibb's energy

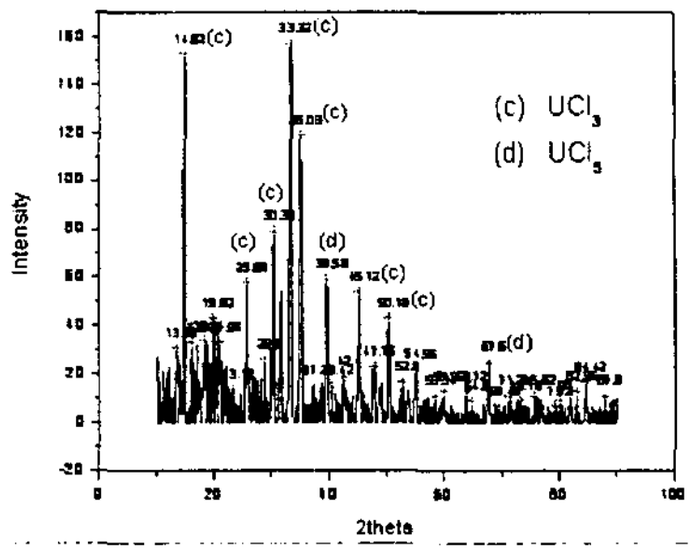

그림 3 UCl_3 XRD 분석 결과