

## High-throughput 전해정련장치 성능평가

이종현, 오규환, 강영호, 황성찬, 심준보, 이한수, 김용호  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150  
 jonglee@kaeri.re.kr

### 1. 서론

파이로프로세스의 핵심공정 중 하나라고 할 수 있는 전해정련 공정은 사용후핵연료의 95% 이상을 차지하고 있는 다량의 우라늄을 처리한다는 관점에서 전체 공정의 생산성을 결정짓는 요소이다. 전해정련공정에 의한 우라늄 회수속도는 기본적으로 인가되는 총 전류량에 의해 결정된다. 그러나 양극 원료물질에 포함된 전이원소 및 양극 구조재의 용해 및 부식을 방지하고 순수한 우라늄을 회수하기 위해서는 cut-off전위 이하로 양극 전위를 관리해야만 한다. 기존 연구결과로부터 밝혀진 양극전위는  $-0.5V$ (vs. Ag/AgCl)로서 이를 유지하기 위해서는 약  $150mA/cm^2$  이하의 전류밀도를 유지해야만 한다. 그러므로 High-throughput 전해정련기의 설계 및 제작을 위해서는 총 인가전류의 증가뿐만 아니라 전극면적의 증대도 필수적으로 필요하다. 또한 전극간의 물리적 거리가 증가할 경우 저항 증가에 따른 전압상승이 발생하므로 제한된 공간에서 전극 면적을 극대화 시키는 개념이 필요하다.

각국에서 개발중인 전해정련장치의 특징을 요약하면 전극간의 거리를 최소화하며, 전착물 회수를 위하여 scraping공정을 도입한 점이다. 따라서 협소한 공간 내에서의 전극 면적이 증대됨으로서 내부의 전기장 분포에 대한 이해가 필요하며, 용융염의 유동 특성을 파악하고 또한 양극에서 발생하는 전이원소 불순물이 우라늄 전착물에 재 오염 되는 현상을 방지하기 위한 전해 셀 설계가 중요한 인자로 대두되게 되었다. 따라서 본 연구에서는 상용 전산코드인 Ansys CFX를 이용하여 20kg/day 처리 용량의 전해정련기 개발을 위하여 기존 기초자료를 바탕으로 필요한 전극면적을 계산하였으며, 다양한 전극 배치를 가정하여 전기장분포를 계산 및 실험적으로 검증하였다.

### 2. 실험 및 결과

기존의 양극용해속도 실험을 통해 얻어진 음극 대비 양극 면적의 비는 약 4배 이상의 양극면적을 확보한 경우 안정적인 셀전위가 관찰된 사실로부터 본 설계시에도 양극면적의 극대화를 주요 설계 변수로 설정하였다. 따라서 직경 1cm×높이 1cm의 우라늄 펠릿을 양극비스켓에 장입하는 것으로 가정할 때 음극면적보다 10배에 가까운 양극면적을 확보할 수 있다. 본 연구에서는 양극과 음극의 배열에 따른 전기장의 분포를 미리 예측하고 금속이온의 전착시 전극의 효율을 극대화 할 수 있는 배치를 찾고자 다양한 형태의 배열을 이용하여 해석을 수행하였다. 본 해석에서는 5종의 음극/양극 배치를 가정하여 전극배열의 상대적인 전기장 분포를 비교하고 이를 검증하기 위하여 수용액상에서 실험이 가능한 구리를 이용하여 inactive실험을 수행하였으며, Anode는 +1V로 Cathode는 -3V로 유지하여 전기장 분포 및 하전 입자의 전착거동을 관찰하였다. 실제 전해정련시에 가장 중요한 요소는 연료물질의 용해가 일어나는 양극의 면적이다. 양극면적이 충분하면 큰 전류 인가 시에도 낮은 양극전류밀도를 유지할 수 있기 때문이다. 전착이 일어나는 음극의 경우는 특정면에 집중적으로 전착이 일어날 경우 우선 성장이 지속적으로 발생하여 음극 상호간에 접촉이 발생할 수 있으므로 가급적 균일한 전착이 바람직하다. 음극을 2열로 배열한 그림 1 a)의 경우 양극과 가까운 전극에 전기장이 집중되는 것을 알 수 있으며, 1열로 배치한 그림 1 b)의 경우는 전극 뒷면까지 전기장이 형성됨을 알 수 있다. 그러나 이 경우는 음극 면적이 충분치 못하여 고전류를 인가시킬 경우 음극 전위가 증가하고 TRU 및 RE가 공 전착될 우려가 있어 바람직하지 않은 전극 구성으로 여겨진다.

해석결과로부터 얻어진 결과를 검증하기 위하여 inactive 실험을 실시하였다. 실험에 사용된 전극구성은 2열의 흑연음극으로 이루어져 있으며, 양극은 분리된 4개의 스테인리스 재질의 바스켓으로

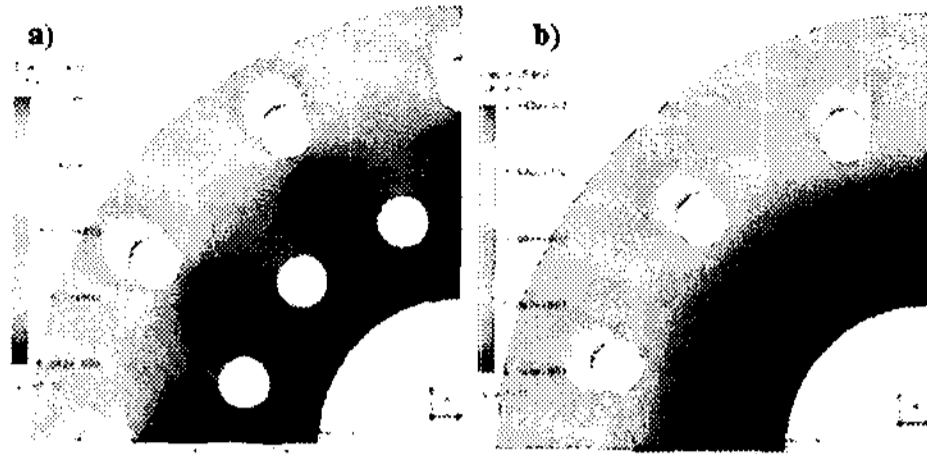


Fig. 1. Electric field distribution in electrorefiner with anode-cathode configurations (cathode -3V, anode +1V, Conductivity of fluid : )  
 a) 24 double layer cathodes  
 b) 12 single layer cathodes

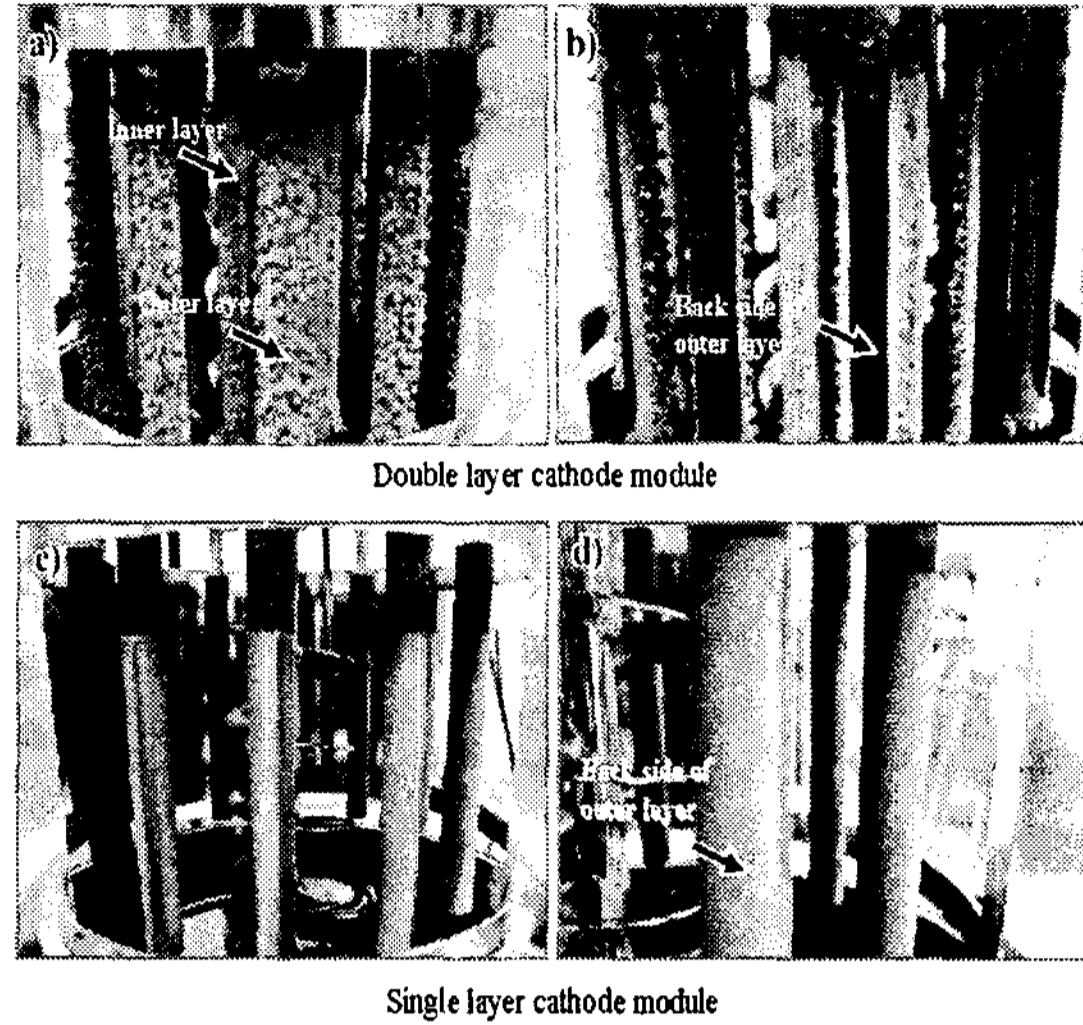


Fig. 2. Photographs of graphite cathodes with double and single layer cathode modules after electrodeposition showing front side (a, c) and back side (b, d) of cathode surfaces.

로 구성되어 있으며, 직경 1cm 높이 1cm의 구리 펠릿을 장입할 수 있도록 제작되었다. 전착실험은 상온에서  $\text{CuSO}_4$ 의 농도에 따라 양극의 회전속도를 변화시켜 각각의 바스켓에서 용해된 구리펠릿의 중량을 측정하여 전류 효율을 측정하였으며, 음극 면적에 전착된 구리의 형상을 관찰하여 전산모사결과에 의해 얻어진 결과와 비교하였다. 그림 2는 전착실험후에 흑연음극면에 전착된 구리의 형상을 나타낸 사진이다. 양극과 음극의 배열은 그림 1 a) 및 b)와 동일한 치수를 적용하였다. 양극과 가까운 거리에 위치한 Outer layer 음극의 경우, 바깥면에 집중적으로 구리가 전착된 것을 확인할 수 있으며, Inner layer의 경우도 바깥면에 비교적 많은 양의 구리가 전착된 것을 확인할 수 있다. 그러나 Outer layer의 뒷면을 살펴보면 구리가 전혀 전착되지 않았음을 알 수 있는데, 이는 전기장 해석 결과와 일치하는 것이다. 한편 그림 1의 b)와 같이 1열의 음극을 사용한 경우의 구리 전착실험 결과를 그림 2 c) 및 d)에 제시하였다. 이 결과도 역시 전기장계산 결과와 일치하게 음극 앞뒤면이 비교적 균일하게 전착이 되었으며, 2중 배열의 음극을 사용할 때의 미 전착부분이 발생하는 현상은 나타나지 않았다. 따라서 실험결과를 통하여 계산 결과를 신뢰할 수 있었으며, 용융염을 이용한 우라늄 전착시에도 전산모사를 통해 결과를 예측할 수 있을 것으로 판단된다.

### 3. 결론

Lab-scale 전해정련기 설계를 위한 기본 자료로서 전극 구조에 따른 전기장 분포를 계산하였다. 2중 배열의 음극 구조가 전기장의 균일분포 측면에서는 단일 배열보다 불리하지만 높은 전류인가를 위해서는 보다 효율적인 것으로 예측되었다. 대체 물질을 이용한 검증 실험결과 계산결과와 잘 일치하였으며, 이를 이용하여 실제 우라늄 전해정련 공정에 적용할 수 있을 것으로 판단된다.