액체카드뮴음극의 우라늄 전착특성 평가

백승우, 김시형, 심준보, 권상운, 김광락, 정홍석, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1450 (덕진동 150)
swpaek@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료의 핵확산저항성 처리기술인 pyroprocess공정에서는 전해정련 공정에서 고체음극을 이용하여 우라늄을 회수한 후 용융염 내의 초우란 원소 및 악티나이드계 원소를 회수하기 위한 전해제련공정으로 액체카드뮴음극(LCC, Liquid Cadmium Cathode)을 이용한다. 액체카드뮴음극에서는 초우란원소와 악티나이드계 원소가 동시에 전착 회수될 수 있으므로 핵확산 저항성이 큰 공정으로서의 장점을 가지고 있다. 그러나 액체카드뮴 음극을 이용하여 우라늄과 초우란 원소를 동시에 회수하는 실험결과에 따르면, 용융염과 액체음극 계면에서 수지상 우라늄(dendrite)이 발생하여 음극도가니 외부로 성장하는 것으로 보고된 바 있다. 이러한 현상의 문제점은 액체음극 표면에 발생한 우라늄 덴드라이트가 고체음극으로 작용하기 때문에, 우라늄 석출만 진행되고 다른 초우란 원소가 전착 회수되지 않는다는 것이다. 따라서 여러 가지 운전조건에서 이러한 우라늄 덴드라이트의 생성을 억제하는 것이 액체금속 음극 성능향상의 핵심기술이 되고 있다. 본 연구에서는 액체음극 표면에서 발생하는 우라늄 덴드라이트의 생성을 억제하기 위한 고효율의 액체음극 구조를 개발하기 위하여 용융염중 우라늄의 액체카드뮴음극 표면전착 실험에 의한 특성자료를 나타내었다.

2. 실험 및 결과

실험에 사용된 액체음극 실험장치의 개략도 및 주요 구성품 사진/제원 등을 Fig. 1 에 나타내었다. LiCl-KCl 용융염에 UCl_3를 첨가하여 500℃까지 가열하고, 용융염 상에서 cyclic voltametry(CV)를 수행하여 우라늄의 존재를 확인한 후, chronopotentiometry 시험을 통해 polarization curve를 구하였다. 이 때, 용융염에 존재하는 우라늄 이온이 균질하게 분포되고 전해석출이 잘 진행되도록 용융염을 60 rpm으로 교반하였으나, 액체카드뮴음극 용기 속에 담긴 액체카드뮴은 교반을 하지 않았다. 최종적으로는, 용융염/액체 카드뮴계에서 정전류 시험을 수행하여 용융염 속에 존재하는 우라늄을 액체금속 상으로 전해석출 시험을 하였다. 인가전류에 대한 전해석출시간을 Faraday 법칙을 통해 계산한 후 전착시험에 반영하였다.

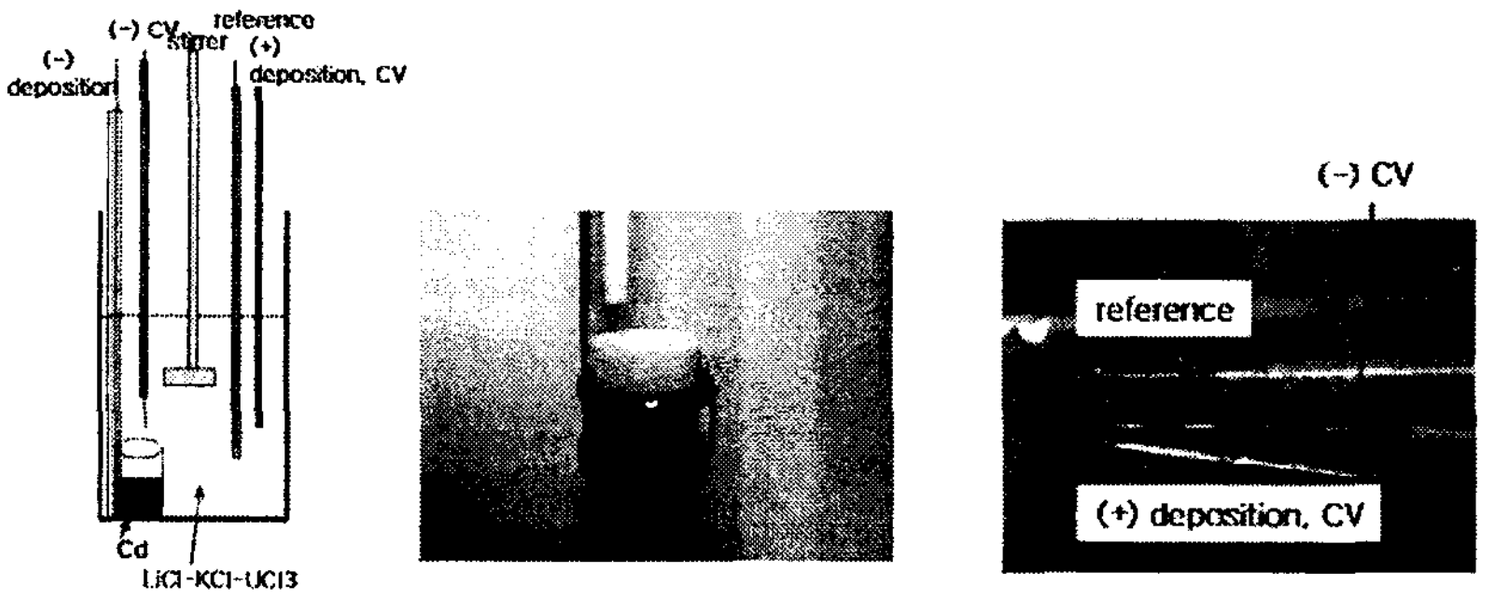

Fig.1 액체카드뮴음극 전해 실험 장치

Glove box의 산소/수분 농도는 각각 1 ppm 이하였으며, LiCl-KCl-1.45wt%UCl_3 염을 200 ~ 250℃에서 약 2시간 동안 가열하여 수분을 제거한 후, Cd가 장입된 음극도가니를 차후에 장입하고 아래 일련의 실험을 진행하였음. 카드뮴에 잠긴 음극선은 카드뮴과 4~5 mm 정도 접촉하게 되

었다. LiCl-KCl-1.45wt%UCl_3 용융염에서의 CV(주사속도 : 20~500 mV/sec) 측정결과를 그림 2에 나타내었으며, 이 결과를 이용하여 주사속도에 따른 환원 peak 전류를 구한 결과 직선관계를 나타내었다(그림 3). 그림 4 는 LiCl-KCl-1.45wt%UCl_3/Cd 전착시험에서 각 전극의 전위변화를 전착시간 또는 Cd에 대한 U 전착량에 대하여 나타낸 것으로서, 인가된 전류밀도는 35mA/cm^2 이었다. Cd 내에서의 U 고용한계인 2.35wt%까지는 음극전위가 증가하였으나, 그 이상에서는 전위가 급격히 감소하고 약 12wt%U가 Cd에 전착될 때는 음극전위가 -1.1V까지 감소되었다.

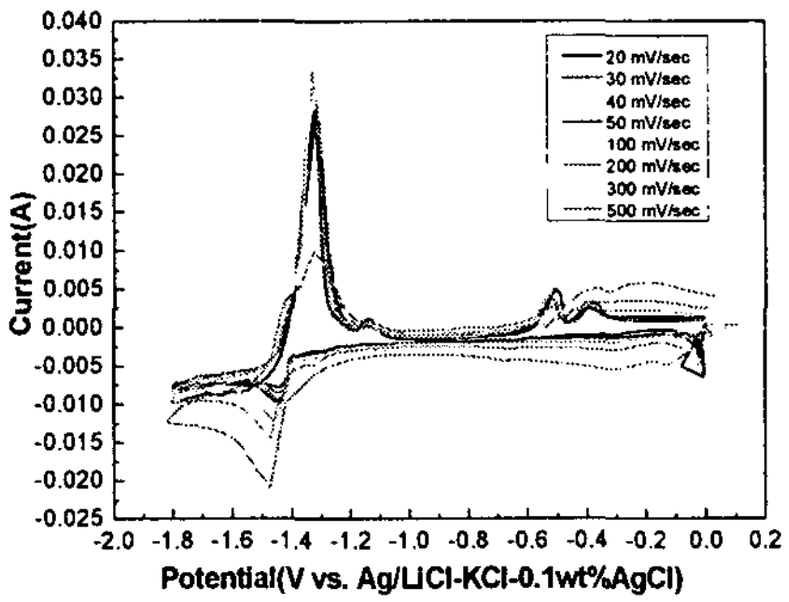

Fig. 2 주사속도에 따른 CV

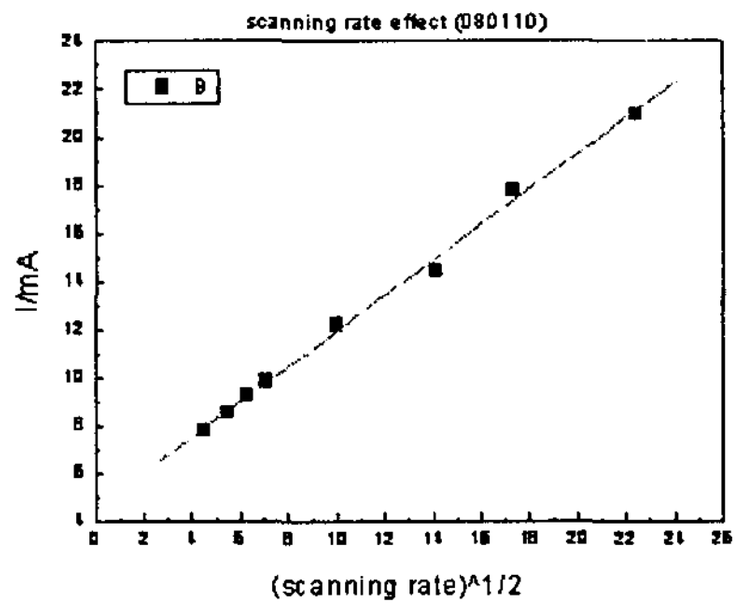

Fig. 3 주사속도에 따른 환원 peak전류변화

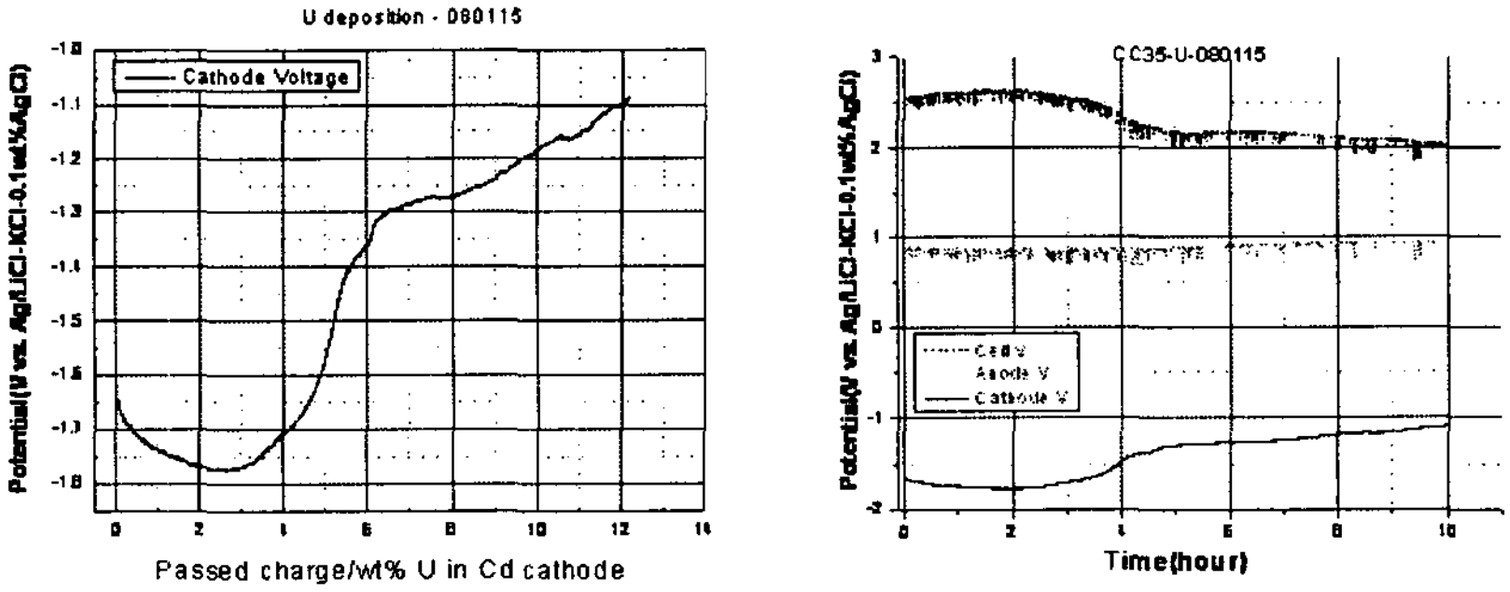

Fig. 4 전류밀도 35mA/cm^2에서 전착시험에 따른 전극전위 변화

3. 결론

본 연구에서는 고효율 액체음극 구조개발을 위한 기초자료를 생산하기 위하여 소용량의 액체카드뮴음극을 이용하여 전류밀도에 따른 우라늄 전착 및 덴드라이트 생성 특성에 대한 실험을 수행하였으며 LiCL-KCl-UCl_3 계에서의 Cyclic Voltametry, Polarization curve 및 Chronopotentiometry 에 대한 실험자료를 제시하였다.

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.