

U-Ce-Y-Nd 계에 대한 전해정련 전착거동 실험

박성빈, 강영호, 황성찬, 김정국, 박기민, 이한수
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 sbpark@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로프로세스는 사용후핵연료를 처리하는 대안으로 주목을 받고 있는 공정이다. 그 중 전해정련공정(Electrorefining)은 파이로프로세스의 핵심공정 중 하나로 사용후핵연료의 약 94wt% 정도를 차지하는 우라늄을 처리하는 중요한 공정이다. 이 공정은 산화물 사용후핵연료를 처리하는 전해환원공정으로부터 나온 금속전환체를 양극으로 하여 우라늄 원소 뿐 아니라 초우란 원소 및 희토류 원소들이 용해된 LiCl-KCl 용융염으로부터 우라늄만을 선택적으로 회수하는 공정이다. 순수한 우라늄을 선택적으로 회수하기 위해서는 우라늄과 다른 원소들이 전해정련 반응 중 음극에 전착되는 거동에 대한 연구가 필요하다. 전해정련반응에 의한 우라늄과 다른 원소간의 분리계수(Separation factor)를 고찰함으로써 우라늄 회수거동을 고찰할 수 있다. 이번 연구에서는 U, Ce, Y, Nd 염화물이 용해된 용융염으로부터 Ce metal을 양극으로 하여 전해정련 반응을 통해 우라늄 전착거동에 대한 희토류 원소들의 영향을 알아보고자 하였으며 LiCl-KCl 공용용염에 용해된 UCl_3 의 농도와 $CeCl_3$ 의 농도 변화에 따른 분리계수를 고찰하고자 하였다.

2. 본론

전해정련 실험은 500°C로 조업되며 회분식 전해정련기에서 수행되었다. LiCl-KCl 공용용염에 U, Ce, Y, Nd 염화물을 용해한 후 양극 바스켓에 Ce 금속을 장입하여 이를 희생전극으로 사용하였다. 음극은 한국원자력연구원에서 개발한, 우라늄 자발탈리가 가능한 graphite cathode를 사용하였다. 음극에 전착되는 거동을 고찰하기 위해 전해정련반응은 정전류법으로 진행되었으며 인가전류는 6A이며 전해반응시간은 1시간이다. 정전류법에 의한 전해반응 후 전해질에서의 각 원소의 농도 및 음극에 석출된 전착물에서의 각 원소의 농도를 분석하였다. 그 결과는 Table 1과 같다. 이 결과를 U과 Ce을 기준으로 한 분리계수로부터 고찰할 수 있다. 첫 번째로 U을 기준으로 한 분리계수를 고찰해보면 Fig.1과 같이 용융염상의 UCl_3 농도 변화에 따른 분리계수의 변화를 고찰할 수 있다. Fig.1에서 보는 바와 같이 UCl_3 의 농도가 증가할수록 분리계수가 증가함을 알 수 있었다. 이로부터 LiCl-KCl 공용용염에 UCl_3 의 농도가 높을수록 우라늄을 선택적으로 회수할 수 있음을 알 수 있었다. 그리고 $CeCl_3/UCl_3$ 의 비율에 따른 분리계수는 Fig.2와 같으며 $CeCl_3/UCl_3$ 의 비가 증가할수록 우라늄에 대해 분리계수는 감소하며 또한 $CeCl_3/UCl_3$ 가 3일 때 분리계수가 대체적으로 작으므로 이 경우 우라늄을 선택적으로 회수하는 것이 어려움을 알 수 있었다. 두 번째로 Ce를 기준으로 한 분리계수를 고찰해보면 Fig.3은 용융염상에서 희생전극으로 사용된 $CeCl_3$ 의 농도 변화에 따른 분리계수를 구한 결과를 나타낸다. Fig.3에서 보는 바와 같이 $CeCl_3$ 의 농도가 증가할수록 분리계수는 감소함을 알 수 있다. Fig.4는 $CeCl_3/UCl_3$ 비율에 따른 분리계수의 변화를 나타낸 그림이다. $CeCl_3/UCl_3$ 의 비율이 증가할수록 분리계수는 감소함을 알 수 있었다. 즉 $CeCl_3$ 의 농도가 높아질수록 음극에 우라늄 및 다른 금속들과 함께 전착되어지며 우라늄만을 선택적으로 전착시켜 회수하는 것이 어려움을 알 수 있었다.

3. 결론

Ce metal을 희생양극으로 사용하여 LiCl-KCl 공용용염에 U, Ce, Y, Nd 염화물에 대한 정전류 전해정련 실험을 수행하였으며 용융염상과 전착물상에서의 U, Ce, Y, Nd의 농도를 분석하여 분리계수를 구하였다. 분리계수에 대한 고찰로부터 UCl_3 농도가 증가할수록 우라늄을 선택적으로 회수할 수 있음을 확인하였으며 $CeCl_3$ 의 농도와 $CeCl_3/UCl_3$ 비가 증가할수록 우라늄을 선택적으로 회수하는 것이 어려움을 확인하였다.

참고문헌

- [1] Y. I. Chang, "The Integral Fast Reactor", Nucl. Technol., 88, 129 (1989).

- [2] J. J. Laidler, J. E. Battles, W. E. Miller, J. P. Ackerman, and E. L. Carls, "Development of Pyroprocessing Technology" Prog. Nucl. Energy, 31, 131 (1997)
- [3] S. X. Li, "Anodic Process of Electrorefining Spent Nuclear Fuel in Molten LiCl-KCl-UCl₃/Cd System" Proc. 13th Int. Symp. Molten Salts, Philadelphia, Pennsylvania, May 12-17, 2002 (2002).

Table 1. Analyses of concentrations of the elements in the salt and deposit phase after electrorefining.

Exp. No.	Current /Time	Current density (mA/cm ²)	Potential (V)		Conc. in the Salt(%)				Conc. in the Deposit(%)			
			Cathode	Anode	U	Ce	Y	Nd	U	Ce	Y	Nd
초기					1.4	0.47	0.75	2.4	-	-	-	-
#1	6A, 1H	318.5	-1.70	0.53	1.1	0.93	0.68	2.4	10.85	15.3	12.0	62.0
#4	6A, 1H	318.5	-2.20	0.15	7.7	1.6	0.53	1.9	1.54	42.93	7.79	47.82
#7	6A, 1H	283	-1.80	0.50	2.6	2.3	0.5	1.6	0.6	56.4	6.07	36.87
#8	6A, 1H	318.5	-1.70	0.60	0.07	2.5	0.46	1.5	0.137	61.71	5.2	32.9

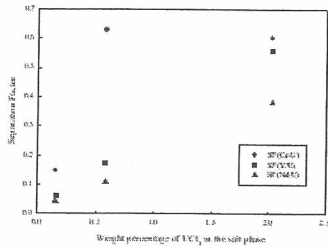


Fig. 1. Separation factors of Ce, Y and Nd with respect to UCl₃ concentration

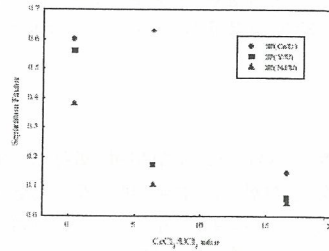


Fig.2. Separation factors of Ce, Y and Nd with respect to CeCl₃/UCl₃ ratio

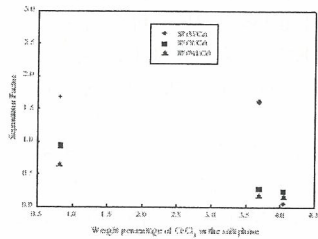


Fig. 3. Separation factors of U, Y and Nd with respect to CeCl₃ concentration

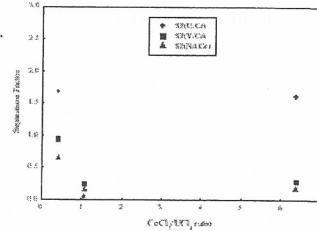


Fig.2. Separation factors of U, Y and Nd with respect to CeCl₃/UCl₃ ratio