

교류임피던스 방법을 이용한 우라늄 용해의 속도론적 연구

이성재, 강영호, 박성빈, 황성찬, 최세영, 이한수, 김정국
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 leesunigai@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료 내에 포함된 다량의 우라늄을 회수하기 위하여 전해정련 방법이 꾸준히 연구되어 왔다. 전해정련 공정으로 다량의 금속 우라늄을 분리하기 위해 전해정련 장치의 효율 향상과 관련된, LiCl-KCl 내에서 우라늄의 전기화학 거동에 관한 연구가 많이 발표되었다. 특히 최근 연구에서 전해정련 반응의 속도는 애노드의 우라늄 용해에 의해 결정되고, 그 중에서 우라늄 내의 이동 (internal diffusion)이 우라늄 용해의 속도 결정 단계 (rate-determining step; RDS)라고 하였다 [1]. 그러나 이 결과에 대한 정량적인 분석이나 전기화학적 분석은 미비한 실정이다.

따라서 본 연구에서는 전해정련 중 애노드에서의 우라늄 용해에 대한 속도론적 연구를 교류임피던스 방법(ac-impedance spectroscopy)을 이용하여 수행하였다. 특히 교류임피던스 방법은 전기전도도가 각진동수(frequency)의 함수로 표시되기 때문에 전극/전해질 계면 반응과 전해질 내부를 통한 확산/이동을 자세하게 관찰할 수 있는 장점이 있다 [2].

2. 실험방법

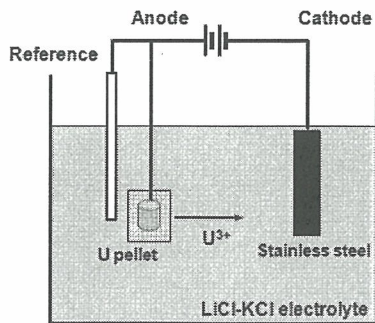


Fig. 1. Experimental apparatus

본 실험에서는 Fig. 1에 도시된 바와 같이 3전극 셀을 이용하여 실험하였다. 모든 실험 및 시약

의 취급은 공기 및 수분의 접촉을 피하기 위하여 공기 및 수분이 약 10 ppm으로 유지되는 glove box 내에서 수행하였다. 전해실험 중 전해질은 500 °C가 유지되도록 하였다 [3].

임피던스 측정은 애노드에서 우라늄 용해에 대한 결과를 얻기 위하여 우라늄 펠렛에 정전위를 가한 후, 10 mV 진폭의 교류를 10⁵ Hz에서 1 Hz로 인가하면서 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 2는 인가전위 0.4 V(Ag/AgCl)에서 우라늄 펠렛에서 측정한 교류임피던스 곡선이다. Fig. 2에서 보이는 바와 같이, 곡선은 좌우 비대칭의 찌그러진 반원모양을 보여준다.

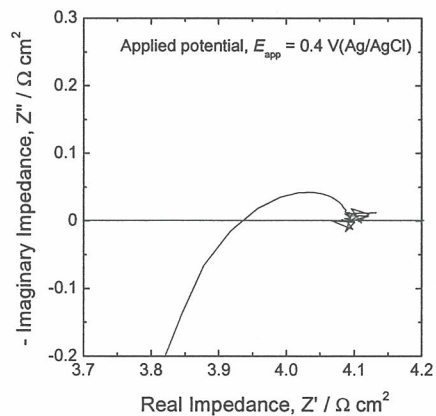


Fig. 2. Nyquist plot of the impedance spectra measured on the U pellet in LiCl-KCl electrolyte applying the constant potential of 0.4 V(Ag/AgCl)

측정된 교류임피던스 곡선을 정량적으로 분석하기 위하여 Fig. 3과 같은 등가회로를 작성하였다 [4,5]. 여기서 R_u 는 Ohmic 저항, R_{ct} 는 전해질 저항, C_{dl} 은 전기 이중층 충전용량, Z_w 는 Warburg 저항을 나타낸다.

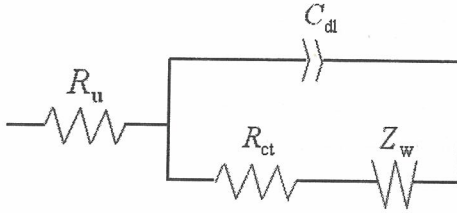


Fig. 3. Equivalent circuit used for analysis of the measured impedance spectra

본 연구에서는 애노드에 가해지는 전위를 변화하면서 표면의 전기화학 반응과 관련된 R_{ct} 및 전해질을 통한 이온의 이동과 관련된 Z_w 값의 변화를 정량적으로 결정하였다.

4. 결론

본 연구는 교류임피던스 방법을 이용하여 전해 정련 중 애노드에서의 우라늄 용해에 대한 속도론적 연구를 수행하였다. 측정된 교류임피던스 곡선의 정량적 해석으로부터 우라늄 용해는 표면에서의 전해전달 반응과 전해질을 통한 이온의 이동이 동시에 영향을 미치고 있음을 확인하였다.

5. 감사의 글

본 연구는 과학고과학기술부에서 주관하는 원자력중장기계획사업의 일환으로 수행하였습니다.

6. 참고문헌

- [1] S.X. Li, Proceeding of ICOM-8, ASME, Baltimore, MD, 2000.
- [2] 이우진, 변수일, 한국부식학회지, Vol.26, No.2, pp.120-140, 1997.
- [3] 강영호, 황성찬, 안병길, 김응호, 유재형, 한국공업화학학회지, Vol.15, No.5, pp.513-517, 2004.
- [4] D. Lelievre, A. de Guibert, V. Plichon, Electrochim. Acta, Vol.24, pp.1243-1245, 1979.
- [5] B.P. Reddy, S. Vandarkuzhali, T. Subramanian, P. Venkatesh, Electrochim. Acta, Vol.49, pp.2471-2478, 2004.