

고효율 전해정련반응기를 이용한 우라늄 전착 실험

박성빈, 황성찬, 이성재, 강영호, 최세영, 김정국, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

sbpark@kaeri.re.kr

1. 서론

최근 사용후핵연료를 처리하는 공정으로 파이로프로세스에 대한 연구가 활발하게 진행되고 있다. 전해정련공정(Electrorefining)은 파이로프로세스의 핵심공정 중 하나로 사용후핵연료의 약 94wt%정도를 차지하는 우라늄을 처리하는 중요한 공정이다 [1]. 산화물 사용후핵연료를 처리하는 전해환원공정으로부터 나온 금속전환체로부터 LiCl-KCl- UCl_3 용융염을 매질로 하여 우라늄만을 선택적으로 회수하는 공정이다. 전해정련반응기를 이용하여 우라늄을 회수하는 처리량(throughput)은 정련반응시스템에 인가되는 총 전류량에 의해 결정된다. 그러나 양극 원료 물질에 포함된 전이원소 및 양극 구조체의 용해와 부식을 방지하고 순수한 우라늄을 선택적으로 회수하기 위해서는 양극 전위를 cut-off 전위 이하로 관리해야만 한다. 또한 음극에 회수되는 우라늄 전착물의 형상이 수지상결정으로 석출되도록 하기 위해서는 약 150mA/cm^2 이하의 전류밀도를 유지해야 한다 [2]. 그리고 전류밀도에 영향을 미치는 LiCl-KCl 용융염 내의 UCl_3 농도를 일정 농도 이상 유지시켜야 한다. 따라서 우라늄 회수의 throughput을 높이기 위해서는 인가전류를 증가시킬 뿐 아니라 전극면적을 증대시켜야 하며 용융염 내 UCl_3 농도를 증가시켜야 한다. KAERI에서는 20kgU/batch 처리용량의 고효율 전해정련반응기를 개발하였다. 이번 연구에서는 고효율 전해정련반응기를 이용하여 용융염 내 UCl_3 농도 변화에 따른 최대인가전류 변화를 관찰하고 U 전착실험을 수행하여 전류밀도 변화에 따른 우라늄 전착특성을 알아보고자 하였다.

2. 실험방법

본 실험에 사용된 20kgU/batch 규모의 고효율 전해정련 실험 장치는 Fig. 1과 같다. 전해정련장치는 금속 우라늄이 적재되는 양극과 우라늄이

전착되는 음극으로 구성되어 있으며 반응 매질로는 LiCl-KCl 용융염을 사용한다. 초기 정련운전을 위해 LiCl-KCl 용융염에 일정 농도의 UCl_3 를 유지하도록 하며 조업온도는 $500\text{ }^\circ\text{C}$ 이다. 음극 재질로 흑연전극을 적용하여 음극에 전착된 우라늄이 자발적으로 탈리되어 반응기 아래로 떨어지게 함으로써 throughput을 향상시켰다. 양극은 카트리지 타입으로 설계하여 전극면적을 증대시키면서 교체가 용이하도록 하였다.

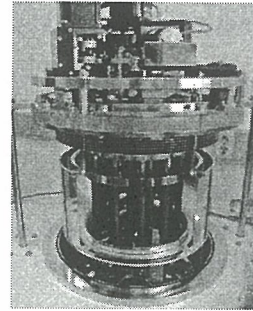


Fig. 1. High-throughput electrorefiner

3. 결과 및 고찰

3.1 전류전압곡선을 통한 최대인가전류

우라늄 전착물 회수 처리량은 전해시스템에 인가되는 총 전류량에 의해 결정되므로 수지상결정의 우라늄을 전착시킬 수 있는 최대인가전류를 확보하는 것이 중요하다. 최대인가전류는 cut-off 양극 전위에 의해 결정되며 양극에 적재되는 금속의 양과 용융염 내의 UCl_3 의 농도에 영향을 받는다. 최대인가전류는 전해시스템의 전류-전위 곡선으로부터 구할 수 있다. Fig.2는 U 전착에 대한 전류-전위 곡선으로 양극에 적재되는 우라늄 금속의 양과 용융염의 UCl_3 농도의 영향을 나타낸 그림이다. Fig.2에서 보는 바와 같이 양극에 적재되는 우라늄 금속의 양이 17kg이며 용융염 내의 UCl_3 농도가 4.3%일 때 양극 cut-off 전위인 -0.5V (vs. Ag/AgCl)를 기준으로 약 125A임을 확인할 수 있었다. 그리고 양극에 적재되는 우라

늄의 양이 21kg이며 UCl_3 의 농도가 2.7%일 때 최대인가전류는 약 110A임을 확인하였다. 두 조건의 결과를 고찰하면, 양극에 적재되는 우라늄의 양이 조금의 차이는 있지만 거의 비슷하다고 할 때 용융염 내 UCl_3 농도가 증가할수록 최대인가전류가 증가함을 확인할 수 있었다.

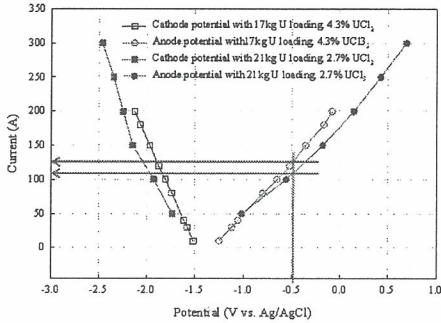


Fig. 2. Current-potential curve for U deposition

따라서 양극에 적재되는 금속의 양이 증가하고 UCl_3 농도가 증가하게 되면 최대인가전류는 증가할 것으로 예상되며 이를 통해 전해정련장치의 처리량 20kgU/batch를 달성할 수 있는 조업조건을 찾을 수 있을 것으로 예상된다. 앞으로의 연구를 통해 최적조건을 확립할 필요가 있다.

3.2 정전류법을 통한 우라늄 전착실험

양극에 적재된 우라늄이 21kg이며 UCl_3 농도가 2.7%인 조건에서 정전류법을 이용하여 음극에 우라늄을 전착 회수하는 전해정련실험을 수행하였다. U 전착실험의 인가전류는 Fig.2의 전류-전위 곡선으로부터 100A로 정하였다. Fig.3은 100A의 인가전위로 4시간 전해정련실험을 수행한 대시간 전위도를 나타낸 그림이다. 이 때 양극 및 음극전위는 각각 약 -0.35, -1.5V이며 셀전위는 1.15V이다. 전류밀도는 음극을 기준으로 하여 약 $70mA/cm^2$ 이다. 우라늄 전착실험 결과 음극에서 회수된 우라늄 전착물은 Fig.4 (a)와 같다. 그리고 인가전류를 150A로 증가시켜 우라늄 전착 실험을 한 결과 음극에서 회수된 우라늄 전착물은 Fig.4 (b)와 같다. 이때 전류밀도는 $104mA/cm^2$ 이다. 전류밀도가 증가할수록 음극에 전착되는 우라늄 전착물의 입자가 더 작아짐을 관찰하였다. 그리고 우라늄 전착물의 입자가 작을수록 염함유량도 높아짐을 확인하였다. 이로부터 후속공정인 음극처리공정의 원활한 운전과 용이한 우라늄 잉곳 제

조를 위해서는 우라늄 전착물의 형상이 Fig.4의 (a)와 같이 전착되는 것이 유리함을 알 수 있다. 따라서 전해정련 조업시 최적 전류밀도를 유지해야 된다.

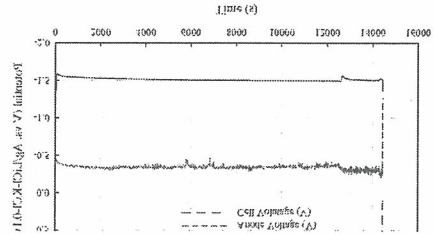


Fig. 3. Chronopotentiogram of U deposition

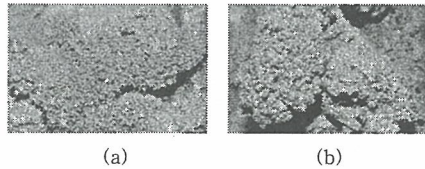


Fig. 4. Recovered U deposits with respect to the applied current, (a) 100A (b) 150A

4. 결론

본 연구는 고효율 전해정련장치에 대한 전류-전위곡선을 측정하여 양극 적재량과 UCl_3 농도에 따른 최대인가전류를 구할 수 있었다. 정전류법을 이용한 우라늄 전착실험으로부터 전류밀도가 증가할수록 전착물의 입자가 감소하고 용융염의 함유량이 증가함을 확인할 수 있었다.

5. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부에서 주관하는 원자력중장기계획사업의 일환으로 수행하였습니다.

6. 참고문헌

- [1] J. J. Laidler et al., Prog. Nucl. Energy, 31, pp.131-140 (1997).
- [2] 강영호, 황성찬, 안병길, 김우호, 유재형, J. Korean Ind. Eng. Chem. 15, 5, pp.513-517 (2004).