

고효율 전해정련 반응기의 정전압·정전류 mode 시 throughput 비교

성기찬, 박성빈, 이성재, 황성찬, 김정국, 이한수
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
gcsung@kaeri.re.kr

1. 서론

사용 후 핵연료를 처리하는 대안공정으로 파이로프로세스에 대한 연구가 미국 및 일본의 여러 연구소에서 활발하게 진행되고 있으며 한국원자력연구원 또한 핵확산저항성이 우수한 장점으로 인해 집중적으로 연구를 진행하고 있다. 파이로프로세스의 핵심공정 중 하나라고 할 수 있는 전해정련 공정(Electrorefining process)은 사용 후 핵연료의 약 93wt% 정도를 차지하고 있는 다량의 우라늄을 처리한다는 관점에서 전체 파이로공정의 생산성을 결정짓는 중요한 공정이다 [1]. 전해정련반응기는 LiCl-KCl- UCl_3 공용용염을 매질로 이용하여 전기화학적으로 양극 내 금속 혼합물에서 음극으로 순수한 우라늄을 회수하는 장치이다. 전해정련공정의 우라늄 회수 수율은 인가되는 전류량에 의해 결정되므로 수율을 높이기 위해서는 인가전류를 높여야 하나 양극의 cut-off 전위에 의해 인가전류는 제한되어진다. 한편, 전류는 양극의 표면에 비례하므로 양극의 면적을 최대한 확보하는 것이 중요하다. 따라서 양극에 채워지는 금속전환체의 형태에 따라 양극 표면적이 달라지므로 전해정련의 수율에 영향을 미침을 알 수 있다. 이번 연구에서는 고효율 전해정련장치를 이용하여 UCl_3 농도 변화에 따른 최대인가전류 변화와 정전압·정전류 mode 시 throughput을 비교해 보고자 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 약 6% 농도의 UCl_3 를 유지하도록 하며 조업온도는 500 °C이다. 음극 재료로 흑연전극을 적용하여 음극에 전착된 우라늄이 자발적으로 탈리되어 반응기 아래로 떨어지

게 함으로써 throughput을 향상시켰다.

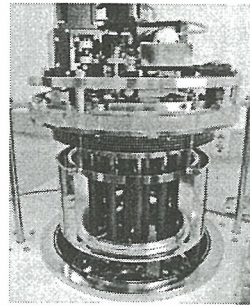


Fig. 1. High-throughput electrorefiner.

3. 결과 및 고찰

3.1 양극 내 금속 형태에 따른 전류-전위 곡선

이번 연구에서는 직경 10mm, 길이 10mm인 금속펠릿과 전해정련을 통해 전착된 우라늄 텐드라이트를 각각 양극에 충전하여 정전압·정전류 mode 시의 전류-전위곡선을 측정하여 최대인가전류를 고찰하였다. 특히 우라늄 텐드라이트를 정전압·정전류 mode 시에 실험한 것의 throughput을 비교해 보았다. Fig. 2는 정전압·정전류 mode 시의 전류-전위곡선을 측정된 결과를 나타낸다.

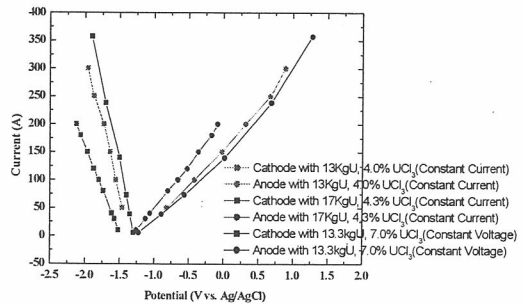
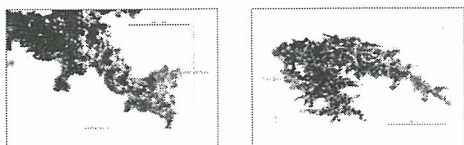


Fig. 2. Current-potential curves with respect to the anode material in constant voltage and current.

동일한 전압 조건시 UCl_3 농도가 증가하면 전류는 증가하여야 한다. Fig. 2에서 정전류 실험의 결과값을 비교해 보면 loading양은 13KgU에서 17KgU로 UCl_3 값은 4.0%에서 4.3%로 증가하였을 때 cut-off 전위값인 0.4V에서 최대 인가 전류가 증가하는 것을 확인할 수 있었다. 하지만 정전류 실험값과 정전압 실험값을 비교해보면 loading양은 13KgU에서 13.3KgU로 거의 변화가 없지만 UCl_3 농도는 4.0%에서 7.0%로 증가하였을 때 정전압 실험의 결과값이 정전류 실험의 결과값 보다 최대 인가 전류가 더 작은 것을 확인할 수 있었다. 정전류 mode 실험과 정전압 mode 실험을 할 때 anode 면적이 10배 이상 크다면 anode over potential을 무시할 수 있어서 정전류 mode 실험과 정전압 mode 실험의 결과값이 일치한다. 하지만 anode 면적이 차가 크지 않다면 anode over potential이 무시할 수 없는 값이 되어 전체 반응속도가 anode와 cathode에 동시에 영향을 받게 된다. 그래서 정전류 mode와 정전압 mode에서 결과값이 다르게 나타난다. 그러므로 전해정련 실험시에는 정전류 mode가 조절이 용이함을 알 수 있다.

3.2 정전압·정전류 mode에서의 우라늄 전착실험

Fig. 3은 전해정련 반응 실험시 정전압·정전류 mode로 실험시 음극에서 회수된 우라늄을 현미경으로 측정 한 것이다. Fig. 3(a)는 정전압 mode로 실험시의 전착물을 확인한 것이다. 정전압 mode에서는 potential이 안정적이지 못하여 전착물의 입자가 크게 변화하는 것을 확인하였다. 반면에 Fig. 3(b)는 정전류 mode에서의 전착물을 확인한 것이다. 정전류 mode 실험시 입자가 일정함을 확인하였다. 회수된 전착물의 현미경 사진에서도 확인할 수 있듯이 전해정련 실험시 정전류 mode로 실행하는 것이 유리함을 알 수 있다.



(a) constant voltage (b) constant current

Fig. 3. Recovered U deposit by microscope.

4. 결론

본 연구에서는 고효율 전해정련장치의 정전압·정전류 mode 시 throughput 비교를 실행하였다. 정전류 실험에서 loading양과 UCl_3 를 증가시켜서 비교해보면 최대 인가 전류가 증가하는 것을 확인하였다. 하지만 정전류 실험과 정전압 실험을 비교하였을 때 UCl_3 양이 증가하였음에도 불구하고 최대 인가 전류가 감소한 것을 확인하였다. 또한 현미경을 통한 측정에서도 정전류 실험이 정전압 실험보다 안정적임을 확인하였다.

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).