

LCC 반응용기 재료에 대한 연구

김지용, 김택진, 김가영, 정재후, 김광락, 심준보, 안도희, 백승우
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

kjy82@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력에너지는 자원문제를 해결하기 위한 친환경적인 에너지원으로 각광받고 있다. 그러나 이에 따른 부산물인 사용후핵연료의 처리문제도 함께 발생하고 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위한 사용후핵연료 재활용기술의 하나로 검토되고 있는 파이로 프로세스는 기존의 처리기술에 비해 핵비확산성이 상대적으로 높으며 경제적이란 이유로 사용후핵연료를 환경 친화적으로 관리하기에 적합한 기술로 인식되고 있다. 파이로 프로세스의 전해제련(electrowinning)공정 중 액체 카드뮴 음극(Liquid Cadmium Cathode, LCC)을 이용한 공정은 500℃ 이상의 고온에서 전착이 이루어지므로 도가니와 전착물간의 화학적 반응으로 분리가 잘 되지 않아서 도가니의 재사용이 불가능함으로 인해 많은 폐기물이 발생하기 때문에 이를 해결할 수 있는 LCC 도가니 소재의 개발이 필요하다.

본 연구에서는 Al_2O_3 , MgO , ZrO_2 , Y_2O_3 , SiC 를 도가니의 소재로 선정하고 이 소재들의 열역학적 자료를 확보하고 도가니의 안정성과 반응성 실험을 수행하여 전해제련 공정폐기물을 줄이고자 하였다.

2. 본론

Fig.1은 이 실험을 위해 다양한 소재로 제작한 LCC 반응용기를 나타내었다. 일반적으로 사용하는 용기는 Al_2O_3 이며 SiC는 Al_2O_3 에 비해 기계적 강도가 커서 용기의 소재로 선택하게 되었고 통전을 방지하기 위해서 다공성으로 제작하였다. 뿐만 아니라, Y_2O_3 와 boron nitride (BN)도 LCC 도가니와 전착물사이의 분리를 돕기 위한 코팅제로 고려하였다.

이 실험은 산소와 수분의 농도가 5ppm 이하, 아르곤 가스 분위기로 되어 있는 글러브박스에서 수행되었으며 사용된 전해조는 열전대, 교반기, reference electrode(Ag/LiCl-KCl-1wt% AgCl),

anode(uranium basket), cathode (liquid cadmium with a Mo lead wire), electrolyte ($LiCl-KCl-UCl_3$)으로 구성하였다. 우라늄 전착실험 중 생성되는 우라늄 dendrite를 제거하기 위해 mesh형 LCC구조를 사용하였으며, 전류밀도는 100 mA/cm², 교반은 100 rpm이었다. 각 반응용기의 재료에 따른 전착물과의 분리시험은 미리 STS재질로 제작한 컵 모양의 용기에 LCC 반응용기를 뒤집어 가열 후 전착물과 용기가 잘 분리되는지 관찰하였다.

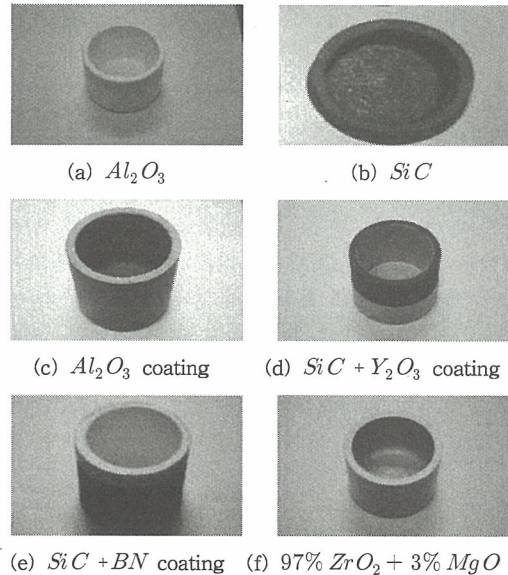


Fig. 1. Photographs of LCC crucible made from various materials.

3. 결론

실험을 수행하면서 몇몇 반응용기에서 문제점들이 파악되었고 Fig.2에는 전착물과 분리 후의 도가니의 그림을 나타내었다. 우선 Al_2O_3 와 $SiC + Y_2O_3$ 코팅으로 제작된 용기는 냉각 시 발생하는 열충격으로 인해 깨지는 현상을 관찰할 수 있었으며, boron nitride로 코팅한 용기의 경우, 전착

물과의 분리가 잘 되었지만 코팅된 boron nitride 코팅막이 깨지는 현상을 확인할 수 있었다. 또한 SiC용기의 경우 다공성이기 때문에 표면이 거칠어 실험 중 우라늄 dendrite가 음극 도가니 외부로 잘 형성되고 전착물이 도가니 바닥에서 잘 떨어지지 않음을 확인할 수 있었다.

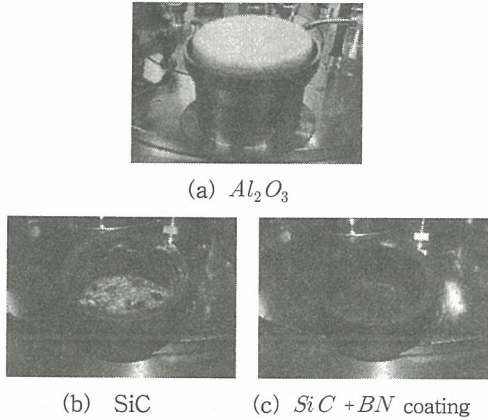
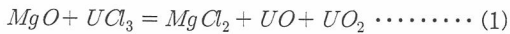


Fig. 2. Photographs of various crucibles after separation.

열충격에 의한 깨짐, 우라늄 dendrite 생성, 코팅막의 손상과 같은 문제점들을 파악하기 위해 실험에 사용된 LCC반응용기의 재료를 대상으로 HSC Chemistry를 통해 용융염내의 UCl_3 와의 반응을 Fig.3[1]에 나타내었다. 이 그래프를 통해 MgO를 제외한 도가니 소재들은 UCl_3 와의 반응성을 보이지 않으며, 오직 MgO만이 아래와 같이 UCl_3 와 반응을 한다.



또한 위에서 언급한 바와 같이 MgO는 UCl_3 와 반응을 형성하지만 97% $ZrO_2 + 3\% MgO$ 를 혼합하여 제작한 용기의 경우, 일주일간의 UCl_3 와의 반응실험을 통해 반응을 보이지 않음을 확인할 수 있었으며, 기존의 Al_2O_3 용기에 비해 기계적 강도가 2배 정도 우수하다는 장점을 가지고 있다. 그래서 SiC 표면을 매끄럽게 하기 위해 Al_2O_3 로 코팅한 도가니와 97% $ZrO_2 + 3\% MgO$ 성분으로 제작된 도가니를 이용하여 추후 전착 실험을 수행할 예정이며, LCC 도가니와 전착물과의 분리가 용이하게 이루어질 것이라 기대된다.

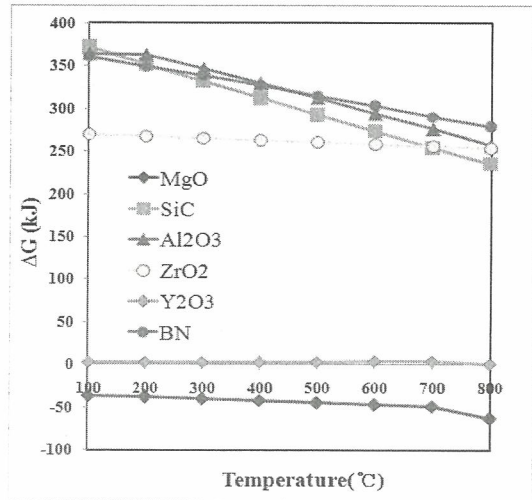


Fig. 3. Calculation of ΔG for the reaction of various shroud materials with UCl_3 using a HSC chemistry (Temp. range: 100-800°C).

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부가 주관하는 원자력 중장기 연구의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] HSC Chemistry ver 6.0.