

# LiCl-KCl-UCl<sub>3</sub> 용융염에서의 양극 용해 관련 전해정련 거동 특성

강한별\*, 박성빈, 김택진, 김시형, 권상운, 이성재, 안도희  
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111  
\*knb@kaeri.re.kr

## 1. 서론

사용후핵연료를 건식으로 처리하는 파이로 공정은 500-650°C의 고온에서 용융염과 전기화학적 방법을 이용하여 사용후핵연료로부터 우라늄과 초우라늄 등을 회수해 4세대 원자로인 고속로의 연료로 재활용 할 수 있는 기술이다[1]. 또한 기존의 습식 재처리 공정과는 달리 고순도의 플루토늄을 별도로 분리할 수 없고 공정 과정이 단순하다는 장점을 가지고 있다. 파이로 공정은 전해환원, 전해정련, 전해제련으로 구성되며 그 중에서 전해정련은 우라늄을 회수하는 공정으로 전체 공정의 효율을 결정하는 중요한 기술 중 하나이다. 본 연구에서는 고온의 용융염에서 U, Zr, STS 펠릿을 사용하여 양극 용해 및 전해정련 실험의 Cut-off potential 을 규명하고자 전기화학 기초 실험을 진행 하였다.

## 2. 본론

### 2.1 실험 방법

전기화학 실험은 Ar 분위기의 Glove box (H<sub>2</sub>O, O<sub>2</sub> < 10 ppm)에서 수행하였고, Glove box 하단에 전해조를 설치하였다. 직경 8.2 cm, 높이 7.2 cm 의 알루미늄 도가니에 용융염 LiCl-KCl-5wt% UCl<sub>3</sub>를 장입하고 전해조를 500°C 로 가열하여 실험을 진행하였다. 작업전극은 각각 U, Zr, STS 펠릿을 Stainless Steel 다공성 바스켓에 담아 고정 시켜 양극으로 사용하였고, 상대전극은 STS plate를 사용하였다. 기준전극은 Pyrex tube에 LiCl-KCl 그리고 1wt% AgCl을 녹인 Ag/AgCl 로 하였다. 전기화학 측정을 위해 Solartron의 Modulab XM ECS를 사용하여 Cycle voltammetry와 Chrono-amperometry를 측정하였으며, Booster를 연결하여 높은 전류를 인가할 수 있도록 준비 하였다.

### 2.2 실험 결과

Fig. 1은 우라늄 펠릿을 양극으로 하여 주사속도 변화에 따른 Cyclic Voltammogram 및 전류 곡선이다. Potential은 -0.6 V 에서 -1.5 V 까지 이동하면서 전류변화를 측정하였다.

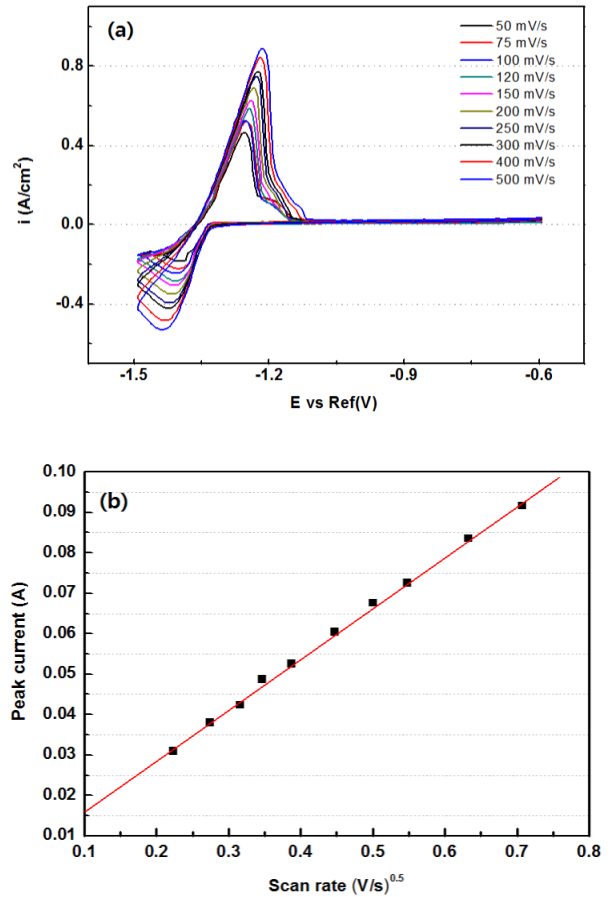


Fig. 1. (a) Cyclic voltammograms of 5wt% UCl<sub>3</sub> in LiCl-KCl on Uranium electrode at 500°C, Scan rate : 50 ~ 500 mV/s, (b) Peak current at various scan rate.

Scan rate에 따른 CV curve를 측정한 결과 환원 peak potential이 점점 이동하는 준가역 반응임을 확인 할 수 있다. 그리고 Randle-Sevcik equation(1)에 따라 피크전류와 주사속도 기울기를 이용하여 확산 계수를 계산할 수 있었다.

$$i_p / \sqrt{v} = [0.61 (nF)^2 / \sqrt{RT}] CoA \sqrt{D} \quad (1)$$

$$D = 6.469 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$$

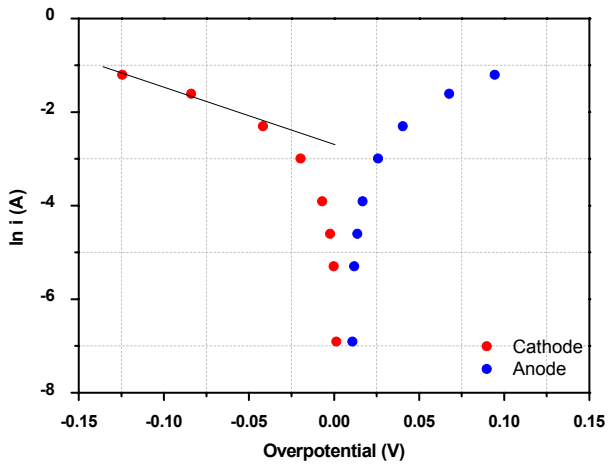


Fig. 2. Tafel plot for 5wt%  $UCl_3$  in LiCl-KCl on Uranium electrode at 500°C, (1-300 mA).

Fig. 2는 우라늄 펠릿을 양극으로 하여 정전류 실험을 진행한 결과 값을 가지고 Tafel plot을 나타내었다. Tafel plot으로부터 식(2)를 적용하여 교환 전류밀도와 전이계수 값을 얻을 수 있었다.

계산된 교환전류밀도와 전이계수 값은 다음과 같다.

$$\ln(-i) = \ln i_0 - \alpha_c n F \eta / RT \quad (2)$$

$$i_0 = 15.62 \text{ mA/cm}^2$$

$$\alpha_c = -(RT/nF) d \ln i / d \eta \quad (3)$$

$$\alpha_c = 0.272$$

이전의 문헌[2]에 나온 교환전류밀도 ( $18.75 \pm 0.42 \text{ mA/cm}^2$ )와 비교해 보면 근사함을 확인할 수 있다.

Fig. 3은 지르코늄과 스테인레스 펠릿에 대해 우라늄 펠릿 용해실험과 동일한 조건에서 진행하여 각 물질의 용해에 대한 전류-전압 곡선을 표시하였다. 전류-전압 곡선을 이용해서 각 물질의 용해 조건 (U : -1.33 V, Zr : -1.0 V, STS : -0.37 V) potential을 확인할 수 있었고, 다른 문헌[3]과 비교해도 크게 차이가 없음을 확인할 수 있었다.

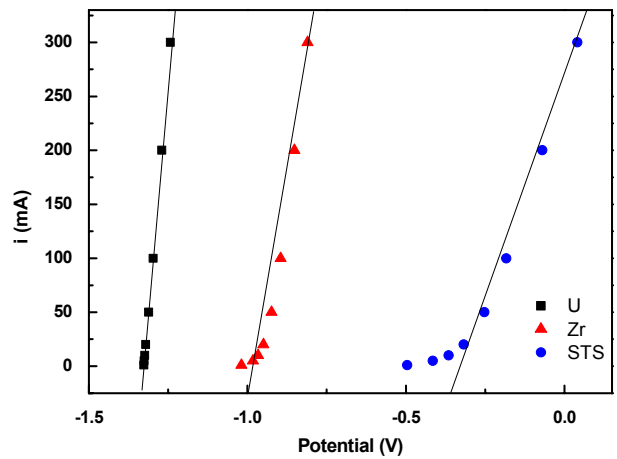


Fig. 3. Polarization curves of the anode basket containing Uranium, Zirconium and Stainless steel, (1 ~ 300 mA).

### 3. 결론

본 실험을 통해 LiCl-KCl-5wt%  $UCl_3$  용융염에서 갖는 우라늄의 전해정련 거동 특성을 살펴보았다. 전기화학 분석법으로 측정된 확산계수, 전이계수 값을 다른 문헌과 비교해 차이가 없음을 확인하였다. 또한 각 물질에 따른 용해 potential을 확인할 수 있었고 여기서 얻은 데이터를 가지고 실제로 U, Zr, STS 같이 있는 조건에서 Zr, STS에는 영향을 주지 않고 U 만 용해될 수 있는 조업 조건에 대한 추가 실험을 수행할 예정이다.

### 4. 참고문헌

- [1] J.P. Ackerman, Chemical basis for pyrochemical reprocessing of nuclear fuel, Ind. Eng. Chem. Res. 30, (1991) 141-145.
- [2] K.H. Lim, S. Park, and J.I. Yun, "Study on exchange current density and transfer coefficient of uranium in LiCl-KCl molten salt", J. Electrochem, Soc, 162(14) E334-E337 (2015).
- [3] T. Murakami, A. Rodrigues, M. Ougier, M. Iizuka, and T. Tsukada, J.-P. Glatz, " J. Nucl. Mater. 466 (2015) 502-508.