

우라늄 전해정련을 위한 텅스텐 전극의 탈리특성 연구

이창화*, 장준혁, 이성재, 박성빈, 안도희

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*chwalee@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로공정은 고온의 용융염에서 사용후핵연료로부터 우라늄(U) 및 초우라늄(TRU)을 전기화학적으로 회수하여 재순환하고, 핵분열생성물을 분리하여 처분함으로써 고준위폐기물의 양을 저감하여 처분면적을 줄이고 에너지효율을 극대화시킬 수 있는 비핵확산성 처리기술이다[1,2]. 파이로 전처리 공정을 통해 제조된 산화 사용후핵연료 원료물질을 전해환원공정에서 금속으로 전환을 시킨 뒤, 전해정련 및 전해제련을 포함한 전해회수 공정을 통해 금속 우라늄 및 우라늄/초우라늄 합금으로 생산한다[3].

특히, 우라늄은 사용후핵연료의 90% 이상을 차지하기 때문에 전해정련 공정에서 금속 우라늄을 전기화학적으로 전착하고, 효과적으로 회수하는 것이 매우 중요하다.

대표적으로 사용되는 음극재인 Stainless Steel(STS)은 가격이 저렴하고, 고온에서 물리적 특성이 우수하여 용융염 전기화학에서 폭넓게 사용되고 있다. 하지만, U 전착물과의 접착성이 좋고 전극표면에서 U-Fe intermetallic compound가 형성될 수 있기 때문에 전착한 U의 완전한 탈리가 어렵다. 반면, 흑연을 음극으로 사용했을 때 전착한 우라늄이 일정 무게가 되면 자중에 의해 자발탈리가 유도되어 상대적으로 깨끗하게 전극에서 분리가 된다. 하지만, 흑연 전극의 기계적 강도가 금속 전극에 비해 약하고, 전극에서 분리된 탄소가 우라늄 전착물을 오염시킬 수 있다는 단점이 있다.

본 연구에서는 비 STS계열의 단일 금속 중에서 텅스텐을 선정하여 우라늄 전해정련 및 우라늄 전착물의 탈리 특성에 대해 살펴보았다.

2. 본론

2.1 실험방법

우라늄 전해정련을 위해 산소와 습도를 수 ppm 이하로 조절할 수 있는 Ar-purging 글로브 박스에서 모든 실험을 진행하였다. 전해액은 99.99wt.%의 anhydrous LiCl-KCl을 3wt.% UCl₃과 함께

500°C에서 용융시켜 사용하였으며, 6 mm 지름의 텅스텐(W) rod를 음극으로, 100 g의 금속 우라늄 펠렛을 담은 STS 재질의 바스켓을 음극으로 사용하였다. 기준전극은 1wt.% AgCl이 포함된 Ag/Ag⁺를 이용하였다.

전기화학 측정을 위해 BioLogic SP-150 Potentiostat/galvanostat을 사용하였으며, load이 포함된 scraper를 사용하여 전착물의 scraping 특성을 살펴보았다. 또한 우라늄 탈리 후 전극 표면 특성을 확인하기 위해 SEM-EDX를 사용하였다.

2.2 실험결과

Fig. 1은 3wt.% UCl₃에 대한 Cyclic Voltammetry (CV)를 보여준다. Potential은 Open Circuit Voltage (OCV, 약 -1.0 V)에서 음의 방향으로 -1.8 V까지 변화시켰으며, 양의 방향으로는 -0.7 V까지 이동하면서 전류응답을 측정하였다. U(III)/U(0) 환원에 대한 onset potential은 약 -1.3 V (vs. Ag/AgCl)로 나타났으며, 약 -1.6 V에서 환원 peak가 관찰된다.

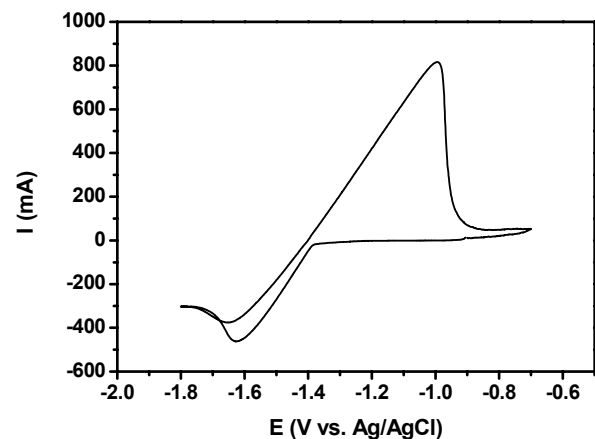


Fig. 1. Cyclic voltammogram for W rod in LiCl-KCl-UCl₃ molten salts.

우라늄 전해정련을 수행하기 위해 -400 mA의 일정전류를 3 시간 동안 인가하여 dendrite 구조의 전착물을 Fig. 2(좌)와 같이 얻었다.

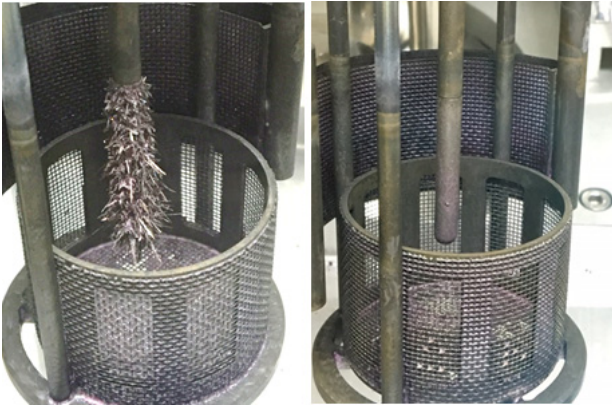


Fig. 2. Tungsten rod cathode before (left) and after (right) scraping U dendrites. Electrorefining was performed in LiCl-KCl-3 wt% UCl_3 molten salts at -400 mA for 3 hrs.

전해정련을 통해 우라늄을 환원시키고 용융염에서 전극 assembly를 인출한 뒤 가열대에서 30 분 동안 위치시켜 전착물 사이에 포함된 잔류염이 배출 되도록 하였다. 그 후 전극에 장착된 scraper를 이용하여 인위적으로 전착물을 탈거 시켰다. 그 결과, Fig. 2의 오른쪽에 나타나 있듯이 전극 표면에 잔류 우라늄이 거의 없음을 확인하였으며, 회수된 전착물은 Fig. 3과 같이 얻을 수 있었다.



Fig. 3. Uranium dendrites scraped from Tungsten cathode.

우라늄 전착물 회수 후, 텅스텐 전극을 STS 전극과 비교하여 육안으로 관찰한 결과, Fig. 4에서 보는 바와 같이 scraping 후 전극 표면 잔류물이 STS 전극에 비해 훨씬 적음을 알 수 있다.



Fig. 4. Comparison of electrode surface after scraping process; Tungsten (left) and STS (right) electrodes.

SEM에서 정밀하게 관찰한 결과 전극 표면에 약 $\sim 2 \mu m$ 정도 크기의 입자가 붙어 있는 것을 확인

했으나, 전극의 반복사용에는 문제가 없을 것으로 판단된다.

3. 결론

LiCl-KCl-3wt.% UCl_3 용융염에서 텅스텐을 음극으로 사용하여 우라늄 전해정련을 수행한 결과 흑연전극과 거의 대등한 전착 및 scraping 특성을 나타내었으며, STS와 비교하여 표면 잔류물이 훨씬 적음을 확인하였다.

4. 참고문헌

- [1] J.P. Ackerman, Chemical basis for pyrochemical reprocessing of nuclear fuel, *Ind. Eng. Chem. Res.* 30, 141-145 (1991).
- [2] J.J. Laidler, J.E. Battles, W.E. Miller, J.P. Ackerman, and E.L. Carls, "Development of pyroprocessing technology", *Prog. Nucl. Energy* 31, 131-140 (1997).
- [3] H. Lee, J.M. Hur, J.G. Kim, D.H. Ahn, Y.Z. Cho, and S.W. Paek, "Korean Pyrochemical Process R&D activities", *Energy Procedia* 7, 391-395 (2011).