

전해회수공정 음극처리장치에서의 RE-Chloride 증발거동 분석

장준혁*, 김택진, 박성빈, 김가영, 은희철, 이성재, 안도희
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*jangjunhyuk@kaeri.re.kr

1. 서론

전해회수공정은 사용후핵연료의 약 93%를 차지하고 있는 우라늄과 TRU를 회수하는 파이로프로세스의 핵심공정으로서, 파이로프로세스의 기술적 타당성 및 경제성을 결정짓는 중요한 공정이다. 전해회수공정은 크게 전해정련공정과 전해제련공정으로 나눌 수 있다. 전해정련공정은 LiCl-KCl 용융염 속에서 우라늄을 고체전극에 석출시켜 회수하는 공정을 말하며, 전해제련공정은 용융염 속에서 Cadmium 액체전극에 U/TRU를 전착시켜 회수하는 공정이다. 두 공정 모두 다량의 염이 회수물질에 포함되어 얻어진다. 즉, 전해정련공정에서 회수되는 우라늄전착물의 경우, 약 20-30wt%의 염을 포함하는 Dendrite의 형태로 회수된다 [1]. 전해제련공정에서는 Cadmium 액체 위에 다량의 염이 덮힌 상태로 회수된다 [2]. 따라서 전해회수공정 후 얻어지는 물질에서 염 또는 염/Cadmium을 제거하여 순수한 우라늄 또는 U/TRU를 얻기 위하여 음극처리공정을 수행하게 된다 [1,2].

음극처리공정은 전해회수공정에서 얻어진 회수물질의 증기압 차이를 이용하여 우라늄 또는 U/TRU에서 다른 물질들을 분리하는 공정이다. 음극처리공정은 압력이 낮아질수록 물질의 증기압이 낮아지는 특성을 이용하여 고온의 저압에서 수행한다. 이러한 증기압은 물질의 고유특성이기 때문에 분리하고자 하는 물질의 증발 특성을 명확하게 이해할 필요가 있다. 또한 전해회수 생성물에 포함된 염에는 LiCl, KCl 뿐만 아니라 다양한 종류의 Rare Earth(RE) chloride가 포함되어 있다. 따라서 이러한 다양한 염들의 증발거동이 음극처리공정에서 매우 중요한 역할을 한다. 하지만 아직까지 RE chloride들의 증발거동에 대한 연구는 매우 미미한 상황이다.

이에 본 연구에서는 전해회수 음극처리공정에서 함유되어있는 다양한 종류의 염들의 증발거동을 분석하였다. 전해회수공정에 사용되는 LiCl, KCl 뿐만 아니라 전기화학반응을 통하여 염 속에 생성되는 RE Chloride(PrCl₃, NdCl₃, CeCl₃, LaCl₃)의 증발거동을 분석하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

물질의 증발거동을 분석하기 위하여 Fig. 1과 같은 고온 TGA 분석장치를 제작하였다. 다양한 종류의 염(LiCl, KCl, PrCl₃, NdCl₃, CeCl₃, LaCl₃) 약 15 g을 Al₂O₃ 도가니에 장입하였다. 이때, 각각의 염들은 99.99wt% 이상의 순도를 가지는 시약을 사용하였다. 시료가 장입된 도가니를 고온 TGA 분석장치 Load-cell에 연결된 도가니 거치대에 장입 후, 반응기 내부를 진공배기 하였다. 내부 분위기는 Rotary Pump를 이용하여 10⁻¹ Torr 이하로 감압하였다. Programmable Furnace를 이용하여 약 1100°C까지 5°C/min의 승온속도로 반응기 내부를 가열하였다. 승온 중 Load-cell에 측정된 장입 물질의 무게변화를 측정하였다.

2.2 시험결과

전해회수공정에 포함된 염들의 증발거동을 살펴보기 위하여, 전해회수염에 다량 포함된 LiCl, KCl, PrCl₃, NdCl₃, CeCl₃, LaCl₃ 등을 선정하여 증발시험을 수행하였다.

Fig. 2는 각각 염들의 증발시험 시, 반응기 내부 온도에 따른 무게변화를 도시한 결과이다. LiCl의 경우 약 650°C의 온도에서 무게감소가 시작되어, 약 700°C의 온도에서부터 급격하게 무게가 감소되었다. LiCl의 무게는 온도가 증가함에 따라 계속 줄어들어 약 800°C의 온도에서 모든 염화물이 증발하였다. 다른 염화물의 증발곡선은 LiCl의 증발곡선과 크게 다르지 않은 형상을 나타내었다. 하지만 KCl은 LiCl보다 다소 높은 온도인 700°C 근방에서 온도감소가 시작되었고, 약 760°C의 온도 이상에서 급격한 무게감소가 관찰되었다.

3. 결론

TGA 분석장치를 이용하여 다양한 염(LiCl, KCl, PrCl₃, NdCl₃, CeCl₃, LaCl₃)의 증발거동을 살펴보았다. LiCl은 가장 낮은 700°C의 온도에서 급격하게 증발하였고, KCl은 760°C에서 증발하였다. RE chloride들은 LiCl, KCl에 비해 다소 높은 증발온도를 나타내었다. PrCl₃는 860°C의 온도에서 효과적으로 증발하는 반면에, NdCl₃, CeCl₃, LaCl₃는 890°C 이상의 고온에서 급격하게 증발하였다. 이러한 결과로부터 음극처리장치에서 염들을 기체상태로 유지하기 위해서는 900°C의 높은 온도로 내부 분위기를 유지해야 함을 확인 할 수 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임 (원자력연구개발사업, No. 2012M2A8A5025699).

5. 참고문헌

- [1] S.W. Kwon, K.M. Park, H. Ahn, H. Lee H and J.G. Kim, "Separation of adhered salt from uranium deposits generated in electro-refiner", J. Radioanal. Nucl. Chem., 288 (2011) 789-793.
- [2] B. Westphal, J. Price, D. Vaden, R. Benedict, "Engineering-scale distillation of cadmium for actinide recovery", J. Alloy. Comp., JALCOM (2007) 15816.

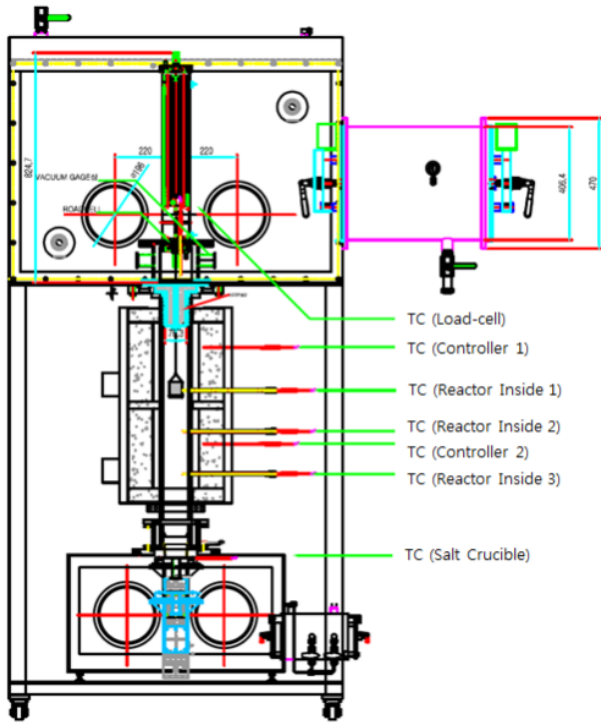


Fig. 1. Schematic of Thermal Gravity Analysis(TGA) Apparatus.

RE chloride들은 LiCl, KCl에 비해 매우 높은 증발온도를 나타내었다. PrCl₃는 약 830°C 이상의 온도에서 무게감소가 시작되며, 860°C 이상의 온도에서 급격한 무게감소를 보여주었다. NdCl₃, CeCl₃, LaCl₃는 비슷한 증발거동을 나타내었다. 즉, 850°C 이상의 높은 온도에서 무게감소가 시작되었고, 890°C 이상의 매우 높은 온도에서 급격한 무게감소를 나타내었다.

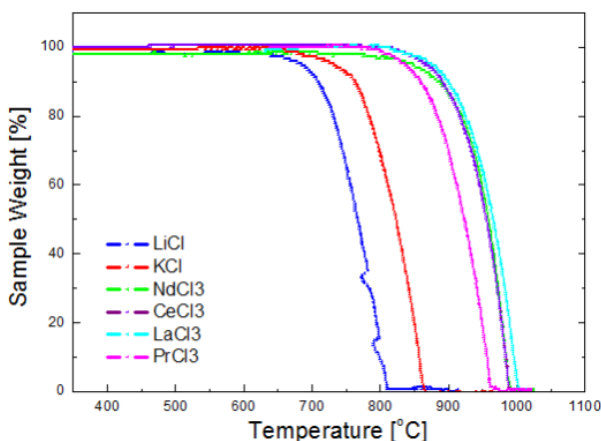


Fig. 2. TG Profile as a function of temperature for various chlorides.