

ACPF 전해환원 Mock-up 시험

최은영*, 이정, 허동현, 이상권, 전민구, 김성욱, 강현우, 홍순석, 박우신, 오승철, 허진목
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*eychoi@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로프로세싱은 전기화학적 방법을 이용하여 사용후핵연료를 재활용하기 위한 기술로 가압경수로에서 발생한 사용후핵연료를 금속연료로 가공하여 차세대 원자로인 소듐냉각고속로의 원료로 사용을 목표로 개발되어 왔다[1]. 파이로프로세싱을 구성하는 단위공정 중 전해환원은 산화물형태의 사용후핵연료를 전기화학적으로 금속으로 전환하여 전해질에 공급하는 역할을 한다. Li_2O - LiCl 용융염을 전해질로 사용하며 금속산화물 형태의 사용후핵연료를 음극, 백금을 양극으로 사용하여 금속전환체를 생산한다. 따라서, 음극에서는 금속산화물이 금속으로 전환되는 환원반응으로 인해 산소 이온이 생성되고, 양극에서는 그 산소이온이 산소 가스가 되는 산화반응이 발생한다[2].

2015년 한미원자력협정의 개정에 따라 그 동안 국내에서 허용되지 않았던 사용후핵연료를 이용한 전해환원 실험을 수행할 수 있게 되었다. 따라서 한국원자력연구원은 보유 시설인 '사용후핵연료 차세대 관리종합공정 실증시설 (Advanced spent fuel Conditioning Process Facility, ACPF)에서 최적화된 전해환원 장치를 이용하여 안전하게 실험을 수행할 수 있도록 예비 mock-up 실험을 수행 중에 있다.

본 연구에서는 depleted uranium이 포함된 simulated fuel을 원료로 전해환원 장치 성능 검증을 위해 수행된 예비 mock-up 실험을 수행하고 분석하였다.

2. 실험

전해환원 장치는 Ar 분위기 글러브박스 (glove box)에서 수행하였다 (Fig. 1). 글러브박스 내부의 수분 및 산소 농도는 각각 1, 10 ppm 이하로 유지되었다. 전해질로는 Li_2O (99.5% purity, Alfa Aesar)- LiCl (99% purity, Alfa Aesar) 5 kg이 사용되었다. 전해환원 장치는 염을 담은 내부반응기, 염 가열 및 온도 유지를 위한 히터, 단열 및 전극

의 염내 고정을 위한 플랜지로 구성된다. 음극바스켓은 20-325-100 mesh로 구성된 스테인레스 스틸 (STS, stainless steel 316L) 3중 mesh를 사용하고, 여기에 담기는 simulated fuel은 0.6 kg의 다공성 펠렛이 사용되었다. 양극 재료로는 백금을 사용하고 양극에서 발생하는 산소 가스를 포집하기 위한 다공성 슈라우드는 325 mesh가 포함된 STS(316L) 5중 mesh (Poroplate)를 사용하였다 [3]. 기준전극으로는 Li-Pb (32 mol% Li)를 다공성 MgO 튜브(내경 5 mm)에 넣고 Ta wire를 Li-Pb에 닿도록 연결하여 사용하였다. 상온에서 12 시간 만에 650°C 에 도달하도록 설정하여 가열한 후 염이 녹으면 전극을 염 내에 잠입한 후 power supply (Agilent 6671A)을 이용해 정전압으로 운전하여 전해환원을 수행하였다. 정전압에 의해 변화하는 음극의 전위는 디지털 멀티미터를 활용해 (Agilent, 34405A) 관찰하였다. 양극의 산소가스 발생 여부는 글러브 박스 밖에 있는 콜드트랩 및 펌프를 지나 연결된 산소 센서를 이용해 확인하였다.



Fig. 1. ACPF mock-up glove box.

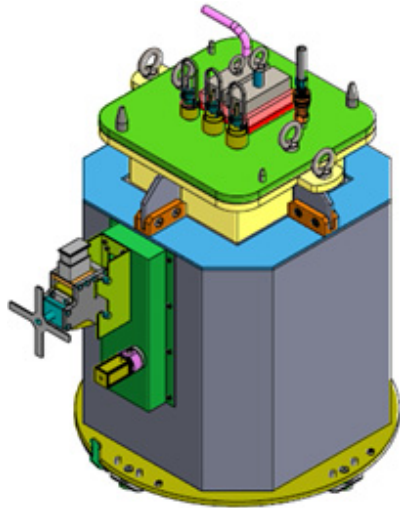


Fig. 2. Schematic of ACPF electrolytic reducer.

3. 결과

Fig. 3은 전해환원 운전 동안 가해진 정전압에 따라 응답한 전류와 음극 전위 및 산소 가스 결과를 보여주고 있다. 금속 리튬의 과도한 생성을 막기 위해 일정 간격으로 전압을 중지한 시간까지 포함하여 약 26 시간 정도가 소요되었다. 전류는 최초 40 A (전류밀도 약 0.46 A/cm^2)가 흘렀으나 시간에 지남에 따라 전극에 침착되는 염 등으로 인한 저항 때문에 점차 감소하는 경향을 보였다. 양극에서 발생하는 산소는 전압 공급 유무에 따라 발생 유무가 관찰되었다. 전해환원 운전 종료 후 양극, 양극 슈라우드 및 음극의 상태를 확인하고 이를 Fig. 4에 나타내었으며, Fig. 5와 같은 은회색은 금속전환체를 확인할 수 있었다. 장치의 성능과 내구성을 확인하기 위하여 이와 같은 방식으로 약 0.6 kg/batch로 연속 배치 운전을 수행하였다.

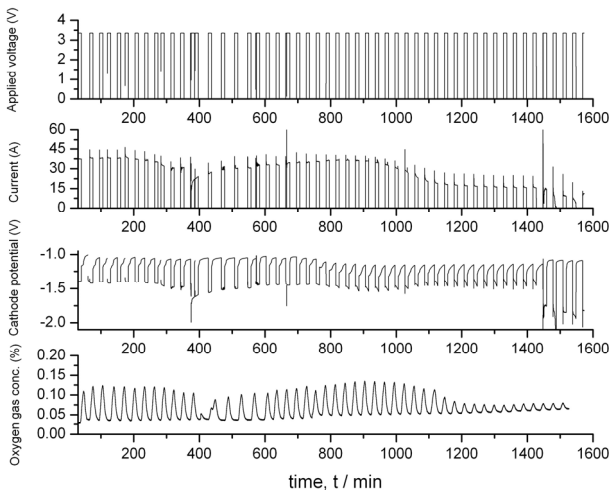


Fig. 3. ACPF mock-up electrolytic reduction data.

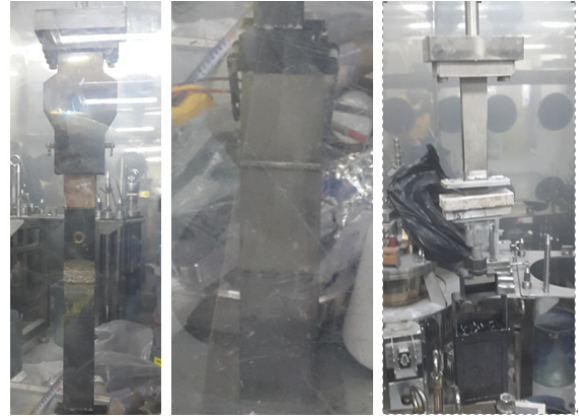


Fig. 4. Electrodes for ACPF mock-up electrolytic reduction: (좌) anode, (중) anode shroud, (우) cathode.



Fig. 5. Reduction product after ACPF mock-up electrolytic reduction.

4. 참고문헌

- [1] H. Lee, G.-I. Park, K.-H. Kang, J.-M. Hur, J.-G. Kim, D.-H. Ahn, Y.-Z. Cho and E. H. Kim, "Pyroprocessing technology development at KAERI", *cl. Eng. Technol.*, 43, 317-328 (2011).
- [2] E.-Y. Choi, S. M. Jeong, "Electrochemical processing of spent nuclear fuels: An overview of oxide reduction in pyroprocessing technology", *Prog.Nat.Sci: Mater.Int.* 25, 572-582 (2015).
- [3] E.-Y. Choi, C. Y. Won, J.-S. Cha, W. Park, H.-S. Im, S. S. Hong and J.-M. Hur, "Electrochemical reduction of UO_2 in $\text{LiCl-Li}_2\text{O}$ molten salt using porous and nonporous anode shrouds", *J. Nucl. Mater.*, 444, 261-269 (2014).