

용융염매질에서의 우라늄 전해정련공정 중 Li₂O의 영향에 대한 연구

김택진, 조영환, 최인규, 지광용

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

t-jin@hanamail.net

사용후 핵연료 차세대관리공정은 기존의 습식방법을 탈피하여 건식방법인 고온용융염 매질에서 진행된다. 이에 사용후핵연료를 고온용융염에서 전기화학적으로 금속으로 전환시키는 연구 활발히 진행되고 있다. 고온의 LiCl-Li₂O 용융염계에서 사용후핵연료를 금속전환과 Li₂O의 전기화학적 환원반응이 동시에 진행되는 통합 반응 메커니즘을 기초로 한 이 공정은 습식보다는 설비가 간단하고, 핵확산저항성이 크다는 장점이 있다. 우라늄의 전기화학적 금속전환공정에서 만들어진 우라늄 금속전환체는 다시 용융염을 이용한 우라늄 전해정련공정을 통해 장수명핵종 및 희토류 원소를 제거하게 된다. 이때, 우라늄 전기화학적 금속전환공정에서 만들어진 금속전환체에는 장수명핵종, 희토류원소 뿐만 아니라 우라늄을 금속으로 전환시키기 위해 필수적으로 사용되어진 Li₂O가 소량 포함 되어 질 수 밖에 없다. 이에 우리는 우라늄 전해정련공정의 주요 물질인 UCl₃와 Li₂O와의 반응성에 대한 연구를 수행하였다. 또한 UCl₃와 란탄족 원소가 반응하여 란탄족 원소들이 용융염에 LnCl₃ 형태로 녹아 있는데 Li₂O가 존재할 경우 녹아있는 란탄족 원소와의 반응성 여부에 대한 연구도 같이 수행하게 되었다.

(1) Li₂O와 UCl₃의 반응성 연구

금속우라늄을 450℃로 용융되어있는 LiCl-KCl 용탕에 넣어주고, 산화제인 염화카드뮴을 같이 넣어주면 치환반응이 일어나서 금속우라늄은 UCl₃로 산화되고, 이때 환원된 카드뮴 금속은 용융상태로 용기 바닥에 가라앉게 된다. UCl₃만 취하여 다른 용기에 담은 다음, 다시 450℃ 용융시킨다. 충분히 용융이 되어 지면, Li₂O를 넣어 주고 교반을 해 준다. 일정 시간 간격으로 교반을 해준 다음 시료를 일부 취한다. 취한 시료를 물에 녹인 후, 페놀프탈레인 지시약을 이용하여 변색 여부를 확인한다. 만약 변색이 되면 Li₂O가 반응을 하지 않고 남아 있을 것이고, 변색되지 않는다면 Li₂O의 대부분이 반응하여 지시약으로 확인 할 수 없을 만큼 적은 양이 남아있다고 볼 수 있다.

수차례 반복 실험 결과 페놀프탈레인 지시약을 넣어 주어도 변색이 일어나지 않았다. 이 결과 Li₂O와 UCl₃가 반응함을 확인 할 수 있었다. 그리고 Li₂O와 UCl₃이 반응해서 생성 될 것이라고 예상되는 우라늄 산화물의 존재 여부를 확인하기 위해 용기 바닥 부분을 취하여 XRD를 측정해 본 결과 그림1과 같은 데이터를 얻을 수 있었다.

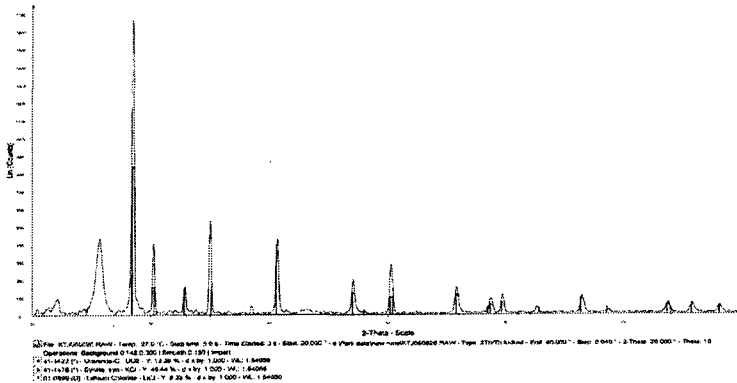


그림1. Li₂O와 UCl₃ 반응후 침전물의 XRD 자료.

(2) Li_2O 와 LnCl_3 의 반응성 연구

시중에 판매중인 LnCl_3 중 대표적으로 NdCl_3 를 구하여 실험을 수행 하였다. 우선 그림2.에서와 같은 샘플용기에 LiCl-KCl 와 NdCl_3 같이 넣어 주고 450°C 에서 충분히 용융시켜 주었다. 우선, LiCl-KCl 용융염에서의 순수한 NdCl_3 의 흡수스펙트럼을 얻었다. 그 다음, Li_2O 를 조금씩 첨가해 주면서 흡수스펙트럼의 변화를 확인 하였다. 그림3.에서 확인 할 수 있듯이 Li_2O 의 양이 증가함에 따라 NdCl_3 의 흡수스펙트럼이 점차 줄어들어 가는 것으로 보아 Li_2O 와 NdCl_3 이 반응한다는 것을 확인 할 수 있었다.

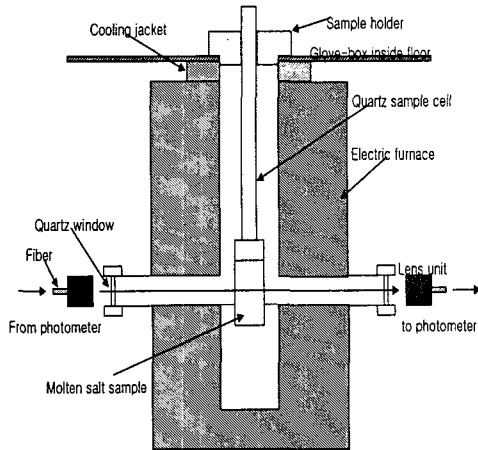


그림2. 반응용기 및 분광측정시스템 개략도

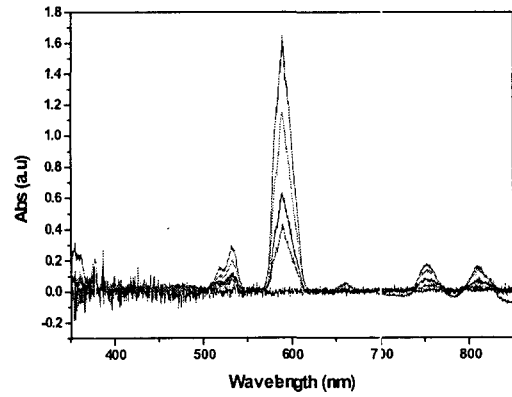


그림3. Li_2O 와 NdCl_3 의 반응 후 흡수스펙트럼