

흑연 전극을 이용한 우라늄 전해정련 특성

강영호, 이종현, 황성찬, 심준보, 김용호

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

yhkang1@kaeri.re.kr

사용후 핵연료를 처리하기 위한 고온 야금 처리공정에서 용융염 전해정련 공정은 제한된 공간에서 사용후 핵연료 내에 포함된 다량의 우라늄을 회수하기 위한 핵심 공정이다. 따라서 전해정련기의 효율을 향상시키기 위한 시도가 활발히 진행되어 오고 있는 실정이다. 전해정련 반응기의 효율 향상을 위해 추구하고 있는 기본 방향은 우라늄이 석출되는 음극의 면적을 넓히고, 전극간의 간격을 줄여 저항을 감소시킴으로서 다량의 전류를 인가시키며, 공정을 개선하여 중단 없이 연속 조업이 가능하게 하는 개념이다. 이를 실현하기 위하여 Mark-V 전해정련 반응기가 개발되었으며, 최근 평형 전극 전해정련 반응기 (Planar Electrode Electrorefiner, PEER)가 미국 Argonne National Laboratory (ANL)에 의해 개발되기에 이르렀다. 그러나 이들 전해정련 반응기는 철계 음극을 사용함으로써 우라늄 전착물 회수 과정에서 전착물이 완전히 탈리되지 않고 고착되는 근본적인 문제점을 안고 있다. 따라서 고착물 제거를 위하여 전극의 극성을 바꾸어 음극의 잔류 전착물을 양극용해 시켜 세척하는 이른바 stripping공정을 거치게 되는데 이공정은 전체 우라늄 전해정련 공정의 전류 효율을 급격히

감소시키는 것으로 알려져 있다.

따라서 본 연구에서는 우라늄 석출물의 고착을 최소화하기 위하여 흑연 음극을 적용한 새로운 개념의 전해정련 반응기에 대하여 보고하고자 하였으며, 회수된 우라늄 석출물 내의 불순물로서 탄소와 희토류금속의 오염도를 측정하여 전해정련을 위한 흑연 음극의 적용 가능성을 알아보하고자 하였다.

우라늄 전해정련은 9 wt% UCl_3 , 500 °C의 LiCl-KCl 공융염에서 기존 전해정련과 동일한 반응기를 사용하였으며, 스테인레스 음극을 흑연으로 대체하여 실험을 실시하였다. 일련의 실험을 통하여

그림 1과 같이 30 mA/cm²의 전류밀도에서 우라늄이 전착됨을 확인하였으며, 그때의 점착 계수 (Sticking coefficient, SC)는 0.6 이었다. 전류밀도를 100 mA/cm²로 증가시킬 경우, 점착계수는 0.06으로 감소하였으며, 그 이상에서는 잔류 우라늄 석출물이 관찰되지 않는 self-scraping거동을 나타내었다. 이러한 흑연 전극의 self-scraping 기구는 그림 2와 같이 우라늄이 흑연과 인터칼레이션 화합물을 형성하여 흑연 격자를 파괴시킴으로서 우라늄 전착물이 일정 하중에 도달 했을 때 자발적으로 탈리되는 현상으로 설명될 수 있다. 이때 우라늄 전착물의 성장은 기 성장된 우라늄 수지상 위에서 지속적으로 이루어지므로 흑연 전극과의 접촉이 제한적으로 발생하여, 최종 석출물 내의 흑연 오염은 300 ppm으로 비교적 낮게 측정되었다. 또한 이러한 흑연의 오염은 우라늄 석출물의 용해 과정에서 금속 이트륨과 반응을 시켜 이트륨 탄화물을 형성시킨 후 용탕 상부로 부유시켜 물리적 제거가 가능하므로 무시할 수 있다. 희토류 성분의 오염을 관찰하기 위하여 용융염

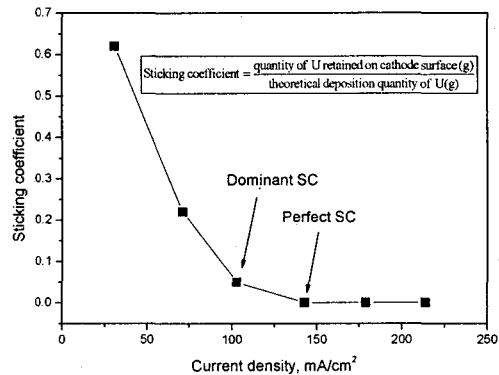


Fig. 1. Variation of sticking coefficient of graphite cathode according to current density (500 °C, UCl_3 : 9wt%, SC : self scraping)

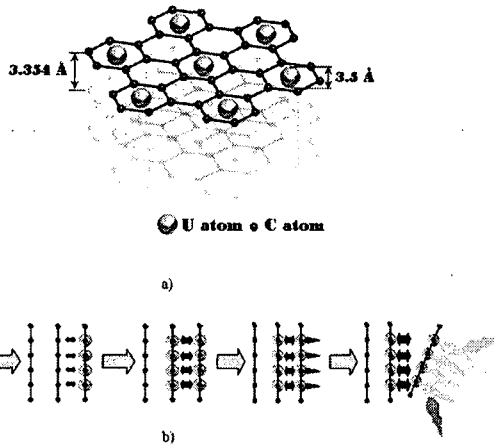


Fig. 2. Schematics of the formation of U intercalates (a) and the self scraping mechanism (b) of graphite cathode during electrorefining of uranium

내에 1 wt%의 $ReCl_3$ 를 첨가한 후 석출물 내의 오염을 측정한 결과 10ppm 이내로 분석되어 $UCl_3 + Re \rightarrow U + ReCl_3$ 의 반응이 진행되므로 대부분의 $ReCl_3$ 가 용융염 내로 재용해 된 것으로 판단되어 우라늄 전해정련 음극으로서의 사용 가능성을 확인하였다. 전해정련후 흑연음극의 표면은 그림

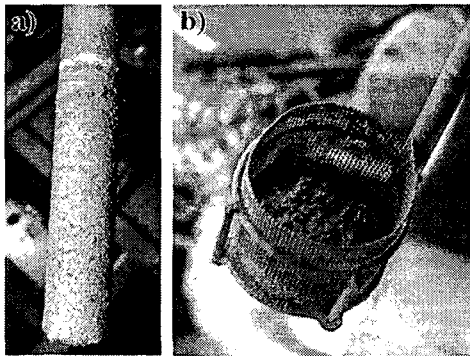


Fig. 4. Self scrapped graphite cathode (a) and recovered U deposit (b)
(500 °C, UCl_3 : 9wt%, current density : $130mA/cm^3$ for 3 hrs)

4와 같으며, 표면에서 우라늄 석출물이 제거되었음을 알 수 있고, 하부에 설치된 장치로부터 성공적으로 회수되었다.