

Li를 이용한 우라늄 미세분말의 용융

허진목, 강대승, 홍순석, 서중석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

jmhur@kaeri.re.kr

고방사성 물질인 사용후핵연료는 원자력 발전 과정에서 필연적으로 발생하는 부산물이며, 이를 효과적으로 처리하려는 연구가 지속적으로 추진되어 오고 있다. 이러한 사용후핵연료 관리 이용기술 개발의 일환으로, 산화물 형태 사용후핵연료를 용융염 상에서 금속으로 환원시킨 다음, 금속 잉곳 형태로 만들거나 다시 사출주조하여 rod 형태로 만들려는 노력들이 진행 중이다. 사용후핵연료 금속잉곳 또는 금속 rod는 중간 저장되거나, 원자력 발전의 금속핵연료 주기에 이용될 수 있다. 특히, 산화물 형태 사용후핵연료의 약 95 질량%는 우라늄 이산화물 (UO_2)이므로, 금속환원, 잉곳 제조, 사출주조 등의 공정의 운전조건은 우라늄의 물성조건에 대부분 좌우된다.

현재까지 알려진 어떠한 방법으로도 고체 우라늄 이산화물로부터 우라늄 금속잉곳을 직접 만들지는 못한다. 따라서, 앞서 기술하였듯이, 한국원자력연구원에서는 LiCl-Li₂O 용융염을 전해질로서 구비한 전기화학적 금속 전환 장치를 이용하여 우라늄 산화물 분말 (U_3O_8)을 우라늄 금속 분말로 환원시킨 다음, 이 미세 금속 분말을 용융시켜 우라늄 금속잉곳으로 제조하고자 하고 있다. 그런데, 금속분말을 용융시키는 공정은 산소에 의한 금속분말의 재산화를 방지하기 위하여 진공 또는 알곤 가스 등의 비활성 기체 분위기에서 수행되는 것이 일반적이다. 그러나, 미세 금속분말은 용융 전처리 과정에서 이미 그 표면이 산화막에 덮여 있거나, 용융 시스템에 존재하는 미량의 산소에 의해서도 표면이 산화되어 버리기 때문에, 금속분말을 용융에 의하여 금속잉곳으로 제조하기는 용이하지 않다. 특히, LiCl-Li₂O 용융염계에서 전해환원에 의하여 제조한 금속전환체의 경우, 약 40 질량%의 잔류염이 존재하고, 이 염이 용융과정에서 휘발되므로 용융시스템 내의 산소농도를 제어하기가 극히 어려울 뿐만 아니라, 950 °C 이상의 고온에서는 Li₂O에 의한 우라늄의 재산화가 발생하는 문제점이 있다.

본 연구에서는 리튬금속을 우라늄 금속분말을 용융시키기 위한 도가니에 장입하고 우라늄 금속분말의 용융을 수행하여, 리튬금속이 우라늄 금속분말의 용융에 미치는 영향을 조사하였다. 리튬금속의 녹는점은 180.5 °C이다. 따라서 리튬금속은 우라늄 금속분말이 산소와 격렬하게 반응하기 시작하는 ~200 °C보다 저온에서 액체상태가 되고, 그 낮은 밀도 (0.5 g/cm³)로 인하여 용융 도가니의 상부에 부유하면서 기체상의 산소가 우라늄 금속분말과 접촉하는 것을 차단하는 것으로 나타났다. 특히, 리튬금속은 끓는점이 1336 °C이므로, 우라늄 (녹는점: 1132 °C)의 용융이 끝난 후, 휘발에 의하여 금속집합체로부터 분리하는 것이 가능하다. 또한 리튬금속은 우라늄 금속분말의 표면에 존재하는 산화막을 파괴하여 용융단계에서 금속분말이 용이하게 응집되도록 하는 역할도 수행한다.

전해환원 실험에서 제조한 우라늄 금속분말의 용융에서는, 저항식 가열로를 이용하여 시간당 500 °C로 1200 °C까지 승온시키는 운전조건으로 우라늄 금속 덩어리를 제조할 수 있었다. 우라늄 덩어리를 세척한 액체를 페놀프탈레인 지시약과 0.1 N 염산을 사용하여 적절한 결과 리튬금속 또는 산화리튬이 물과 반응하여 생성된 수산화리튬의 생성은 관찰되지 않았으며, 제조된 금속 덩어리의 밀도는 19 g/cm³으로 측정되어, 순수한 우라늄 덩어리의 제조를 확인할 수 있었다. 그런데 과량의 잔류염, 특히 산화리튬이 존재하는 경우에는 리튬금속에 의한 우라늄 금속의 용융성 증진에는 한계가 있다. 즉, 잔류염의 양이 많을 경우에는 가벼운 리튬과 무거운 우라늄 금속성분 사이에 염층이 존재하여 리튬에 의한 산화막 파괴효과가 저해된다. 그리고 과량의 산화리튬이 우라늄을 산화시키는 현상은 비록 고온에서 리튬 금속의 잔류염에의 용해도가 증가하더라도 방지할 수 없을 것이다. 이에 관한 정량적 분석이 용융방법의 개선과 아울러 후속연구로 추진될 것이다.