

다중흑연음극을 이용한 전해정련 Throughput 향상

이종현, 강영호, 황성관, 오규환, 이한수, 김용호
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지
jonglee@kaeri.re.kr

고온 야금처리공정에 의한 사용후 핵연료의 전해정련공정은 용융염내에서 전기화학적으로 핵연료를 용해시키고, 순수한 우라늄만을 회수하는 공정이다. 이러한 전해정련 공정은 사용후 핵연료내의 주요성분인 다량의 우라늄을 높은 순도로 제한된 공간에서 효율적으로 회수해야 하므로 소규모의 throughput이 높은 반응장치가 필요하다. 현재까지 진행되어오고 있는 전해정련관련 연구는 전해정련 반응기의 효율 향상을 위하여 우라늄이 석출되는 음극의 면적을 넓히고, 전극간의 간격을 줄여 저항을 감소시킴으로서 다량의 전류를 인가시키며, 연속적으로 조업이 가능하도록 장치를 개선하는 공정개발이 주로 이루어져 왔으며, 음극 전착물을 용이하게 회수하기 위한 다양한 전기화학적 및 공정연구가 활발히 진행되어 오고 있다. 그러나 기존 공정은 철계 음극을 사용함으로써 인하여 우라늄 전착물 회수 과정에서 전착물이 완전히 탈리되지 않고 고착되는 근본적인 문제점을 안고 있다. 따라서 고착물 제거를 위하여 전극의 극성을 바꾸어 음극의 잔류 전착물을 양극 용해 시켜 세척하는 이른바 stripping공정을 거치게 되는데 이공정은 전체 우라늄 전해정련 공정의 전류 효율을 급격히 감소시키는 것으로 알려져 있다. 저자들은 이를 해결하기 위하여 흑연음극을 이용한 전해정련 공정을 발표하였으며, 이를 통해 기계적 scraping공정이 필요치 않은 전해정련 개념을 확인한 바 있다. 그러나 이의 실용화를 위해서는 흑연전극면적의 증가가 필요하며, 이때의 전해정련 성능을 평가할 필요가 있다.

따라서 본 연구에서는 우라늄 석출물의 고착을 최소화하기 위한 흑연 음극을 적용하여, 복수의 흑연음극을 이용한 전해정련 특성을 검토하고자 하였으며, 이를 통하여 high-throughput 전해정련 반응기 설계의 기초자료로 삼고자 하였다.

- 실험방법

우라늄 전해정련은 9 wt% UCl_3 , 500 °C의 LiCl-KCl 공융염에서 기존 전해정련과 동일한 반응기를 사용하였으며, 단일 흑연음극을 사용한 기존 연구와는 달리 복수의 흑연음극을 배치하여 전극 면적을 증가시켰다. 실험 장치는 그림 1과 같이 중심부에 양극 바스켓을 설치하였으며, 이를 중심으로 4개의 흑연음극을 배치시켰다. 음극간의 간격은 전해정련 장치의 소규모화에 매우 중요한 영향을 미치는 요소로서 본 실험에서는 약 40mm를 유지하여 self scraping 특성에 미치는 영향을 고찰하였다. 단일 흑연전극을 사용할 경우 150 mA/cm²의 전류밀도에서 self-scraping 거동을 확인하였으므로, 본 실험에서도 같은 조건의 전류밀도에서 self-scraping 및 throughput을 측정하였다.

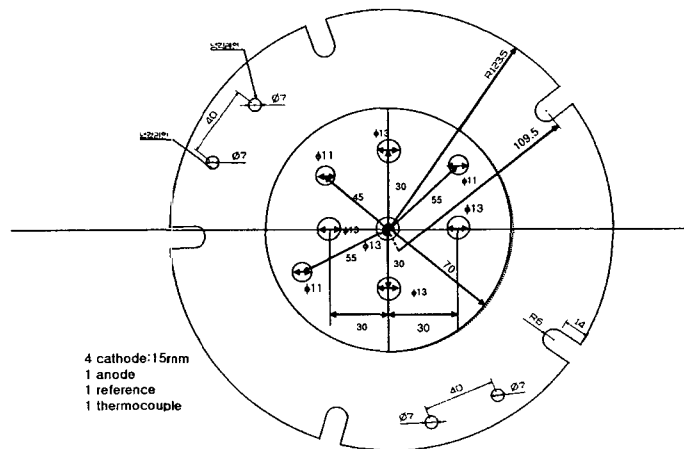


Fig. 1. Cover design for multi channel graphite cathode.

- Self-scraping 거동 및 throughput

다중 흑연음극을 이용한 전해정련 실험 시 기존 양극을 상용한 경우 양극 전위가 0V(Ref. Ag/AgCl) 이상으로 증가하여 전해실험을 중단하였다. 양극전위가 -0.5V 이상으로 증가할 경우, 양극 구조재 성분인 철의 용해가 발생할 수 있어 cut-off 전위로 설정하고 있으며, 이러한 양극전위의 상승은 음극 면적에 비해 양극 면적이 작아 발생한 것으로 보여 기존의 양극면적에 비해 약 2 배 이상으로 양극면적을 증가시킨 결과 안정된 양극전위를 확보할 수 있었다. 또한 전해정련 실험 결과 단일 흑연음극을 사용할 때와 유사한 self-scraping 거동을 확인할 수 있었으며, 표 1과 같이 음극 면적에 대하여 throughput이 향상될 수 있음을 알 수 있었다.

Table 1. Throughput calculation for electrorefiner using graphite cathode with 48 cm² of surface area and 150 mA/cm² of maximum current density

The No. of cathode	Total cathode surface area, cm ²	Maximum current, A	Current density, mA/cm ²	Calculated throughput(cell efficiency 70%)	
				gU/h	gU/h cm ²
1	48	7.2	150	14.9	0.31
2	96	14.4	150	29.8	0.31
3	144	21.6	150	44.8	0.31
4	192	28.8	150	59.7	0.31
5	240	36	150	74.6	0.31
6	288	43.2	150	89.5	0.31
7	336	50.4	150	104.4	0.31
8	384	57.6	150	119.3	0.31

- 결론 및 향후 계획

금속 사용 후 핵연료 처리를 위한 고온용융염 전해정련시 철재음극을 흑연음극으로 대체함으로써 고성능 전해정련 장치의 throughput 증대 방안으로 활용 가능함을 알 수 있었다. 일련의 실험을 통하여 우라늄 전착물이 자발적으로 탈리되는 현상을 관찰하였으며, high-throughput 전해정련 장치에서 음극뿐만 아니라 양극면적의 대폭적인 증대가 수반되어야 함을 확인하였다. 흑연음극을 이용한 금속우라늄의 전해정련공정은 효율을 대폭 향상시킬 것으로 판단되며, 이를 통해 연속조업이 가능한 전해정련 반응기 개발이 이루어질 계획이다.