

U₃O₈ 분말의 고온 용융염 전해환원 반응에 관한 연구

박병홍, 이일우, 서중석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)

bhpark@kaeri.re.kr

산화물 형태의 사용후핵연료를 고온 건식공정을 이용하여 금속전환시키는 공정 기술은 사용후 핵연료의 부피 저감과 고방열성 핵종 제거를 통한 사용후핵연료 관리비용 감소를 위해 개발되고 있다. 사용후핵연료의 금속전환은 고온 LiCl-Li₂O 용융염계에서 전기화학적 방법으로 이루어진다. 이와 같은 고온 용융염 전해환원 공정은 환원을 위한 대상물질을 음극으로 하고 비소모성 양극을 사용하여 높은 순도의 금속전환체와 높은 회수율을 보이는 장점을 지니고 있다. 현재 전해환원 공정은 기술 적용가능성의 단계를 넘어 대용량화를 위한 scale-up의 연구가 활발히 진행되고 있다. 그러나 현재까지 분말형 U₃O₈의 전해환원에 대한 공정조건에 따른 반응에 관한 연구는 부족한 실정이다.

본 연구에서는 10 g U₃O₈/batch 반응기를 사용하여 다공성 마그네시아 필터에 충전된 U₃O₈ 분말의 일체형 음극에서의 반응에 대한 공정조건에 대한 연구를 시도하였다. 반응기에 인가된 전류의 양을 변화시켜 환원율을 측정하였으며 전압 거동을 관찰함으로써 U₃O₈의 전해환원 특성에 대한 정성적 및 정량적 자료를 얻었다. 낮은 전류 조건에서 U₃O₈의 환원의 전압 변화는 높은 전류 조건과 상이한 거동을 보였으며 이는 각 전류 조건에서 상이한 반응 메커니즘이 작용하는 것으로 판단된다. 낮은 전류 조건에서 일체형 음극의 전위 변화는 Li 환원 전위에 도달하지 못했으나 점차 반응시간이 경과함에 따라 Li 환원 전위 근처로 변화하는 다단 반응 거동을 보였다. 그러나 높은 전류 조건(0.8A)에서는 반응 초기부터 Li 환원 전위에 도달하여 Li 환원에 이어지는 화학반응에 의해 U₃O₈이 금속으로 전환되는 것으로 나타났다.

Li 환원에 의해 U₃O₈이 금속으로 전환되는 경우 일정 전류 조건에서 U₃O₈의 금속전환율은 인가 시간 즉 인가 전하량에 선형적으로 변화하였다. 이는 U₃O₈의 전해환원이 Li 환원에 이은 화학반응에 의해 발생한다는 간접적 증거로서 전기화학 반응 특성인 일정 전류 조건하에서 일정한 반응속도를 나타내고 있다. 그러나 전기화학적으로 생성된 Li 금속이 반응 종료후 일체형 음극에 잔존하였으며 이는 Li 금속과 U₃O₈의 빠른 화학 반응을 고려하였을 때 전기화학적 반응에 의해 생성된 Li 금속이 일체형 음극의 산화물 분말이 밀도차 등에 의해 적절히 접촉하지 못했다는 것을 의미하고 있다. 따라서 전해환원 반응의 전류 효율을 극대화시키고 반응시간을 단축시키기 위해서는 일체형 음극에서 전기화학적 반응에 의해 생성된 Li 금속과 산화물의 접촉을 활성화시켜야 한다.