

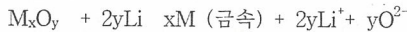
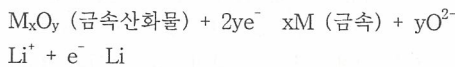
우라늄산화물의 전해환원 특성 연구-Lab Scale Test

최은영, 정상문, 허진목, 최인규, 권선길, 강대승, 홍순석, 신호섭
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
evchoi@kaeri.re.kr

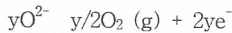
1. 서론

경수로 사용후핵연료로부터 다시 핵연료 물질로 재사용할 수 있는 우라늄을 분리/회수하기 위한 고온전해분리공정 (pyroprocessing)은 경제성, 환경친화성, 핵비확산성을 만족시키는 차세대 재처리 기술로 활발한 연구개발이 이루어지고 있다. 고온전해분리공정에서 산화물형태의 사용후연료를 금속으로 전환시키는 전해환원 공정은 일반적으로 LiCl에 염소가스 발생을 방지하기 위해 Li₂O를 포함한 혼합용융염을 매질로하여 양극을 basket형태로 만들어 금속산화물인 사용후연료를 담아 음극과 연결하여 전압을 가하면 다음 반응식과 같은 메커니즘을 통해 이루어진다.

양극반응 :



음극반응 :



한국원자력연구원의 전해환원 공정은 기존의 수~수십 그램 단위의 우라늄산화물을 이용하여 수행한 bench-scale test에서 얻은 실험조건을 기반으로 20 kg급 lab-scale test를 수행하고 그 전해환원 반응 특성에 대하여 고찰하였다.

2. 실험 및 결과

용융염 매질로 사용되는 LiCl은 흡습성이 매우 커 수분을 포함하고 있기 때문에 LiCl의 수분제거는 우라늄 산화물의 전해환원과 부식 방지를 위해 필수적이다. 본 실험에서는 효과적인 수분제거를 위해 대량 (20~30 kg)의 LiCl을 도가니에 넣고 고온에서 진공을 유지하면서 원하는 온도에서 두어 LiCl의 수분이 효과적으로 제거되도록 전해환원 공정 전에 미리 처리하였다. 또한 처리된 LiCl에 수분의 재흡수를 막기 위하여 전해환원 반응시스템이 있는 고순도 아르곤 글로브 박스에 보관하였다 (Fig.1).

전해환원을 위하여 사용될 우라늄 산화물 연료는 U₃O₈ 파우더를 0.2 wt%의 윤활제와 섞고 pelletizer를 이용해 지름 6 mm, 높이 8 mm의 원통형 모양을 만든 후 700~1350 °C의 온도에서 소결하여 사용하였다.

17kg의 UO₂ 펠렛을 cathode basket (Fig.2) 에 넣고 요구 전하량의 약 134 % (35,633,288 C)을 71.7시간 동안 정전압 (3.2~3.3 V)로 운전하여 전해환원하였으며 (Fig.3) 이에 따라 환원전극은 -0.8~-1.0 V 가량의 전위 변화를 보였다 (Fig.4). 전해환원 과정에 흐른 전류량은 120~150 A 정도였다 (Fig.5). 전해환원 중의 Li₂O 농도는 1.37 wt%에서 시작하여 요구 전하량의 18 % 정도를 가해주었을 때 0.9 wt% 까지 떨어져 670 g 을 추가로 투입하였으나 그 이후에는 크게 변화하지 않고 안정하여 1.8 wt% 정도를 유지하였다. 염 높이는 실험 전 후 모두 40.5 cm로 휘발로 인한 염의 손실은 거의 없었다.

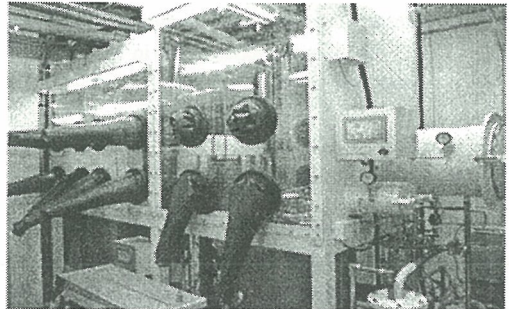


Fig. 1. Glove-box for lab-scale electrolytic reduction of uranium oxide experiment.

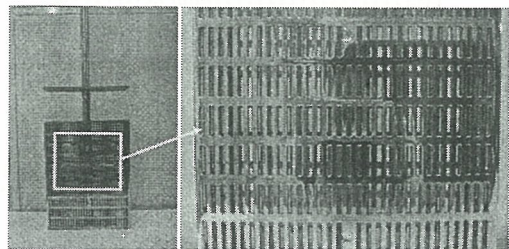


Fig. 2. Cathode basket used for lab-scale electrolytic reduction of uranium oxide experiment.

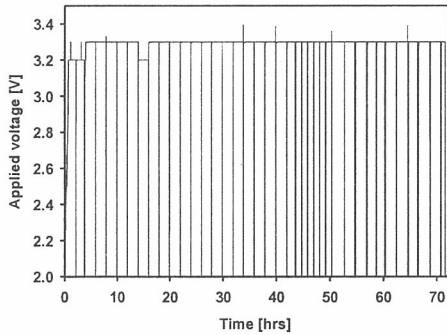


Fig. 3. Applied voltage-time plot during electrolysis of 17 kg-uranium oxide pellet in a Li₂O/LiCl molten salt at 650 °C.

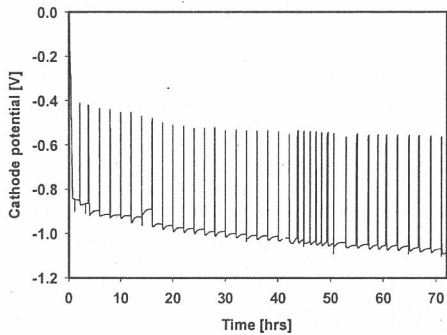


Fig. 4. Cathode potential-time plot during electrolysis of 17 kg-uranium oxide pellet in a Li₂O/LiCl molten salt at 650 °C.

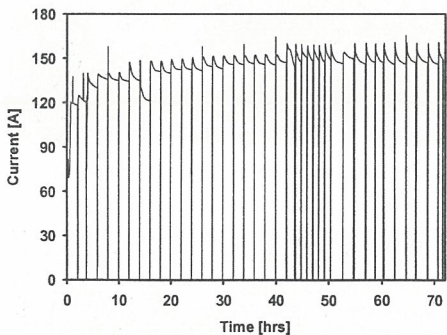


Fig. 5. Current-time plot during electrolysis of 17 kg-uranium oxide pellet in a Li₂O/LiCl molten salt at 650 °C.

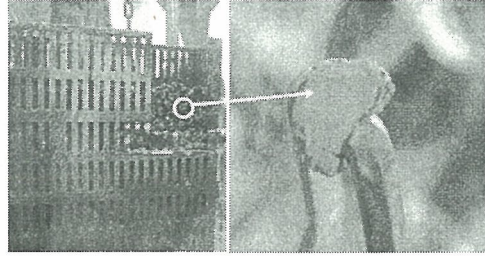


Fig. 6. Photograph of (a) cathode basket after electrolytic reduction of 17 kg-oxide pellet and (b) cross-section of a reduced uranium oxide pellet.

실험 종료 후 산화전극과 염에서 들어 올려 밖으로 빼낸 후 백금에 손상이 일어나지 않고 원래의 형태를 그대로 유지하고 있음을 확인하였으며 환원 전극의 경우 펠렛의 일부를 샘플링 하여 분석하였다. 육안으로 관찰한 결과 펠렛 전체적으로 균일하게 환원이 잘 일어났음을 확인할 수 있었고 (Fig.6) X-ray diffraction 분석을 통해서도 선명한 우라늄 peak을 관찰할 수 있었으나 일부 UO₂도 남아있음이 확인되었다. thermal gravimetric analysis 결과 전환율은 약 90 % 정도임을 확인하였고 Li+Li₂O의 농도는 2 wt%, 세척 전에 펠렛에 남아 있는 염과 Li의 무게비는 10~15 wt% 였다. 이 실험을 통해 준비한 전해환원 시스템이 대량의 연료 사용에도 정상적으로 작동함을 확인할 수 있었으며 가해주는 전하의 양을 늘리면 100 %에 가까운 전해환원도 가능할 수 있음을 알 수 있었다.

3. 감사의 글

본 연구는 원자력 증강기연구개발사업의 일환으로 교육과학부의 지원을 받아 수행되었습니다.