

양극 내 금속 형태에 따른 전해정련 수율 영향

박성빈, 황성찬, 이성재, 강영호, 최세영, 성기찬, 김정국, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

sbpark@kaeri.re.kr

1. 서론

산화물 사용후핵연료를 처리하는 대안공정으로 파이로프로세스에 대한 연구가 미국 및 일본의 여러 연구소에서 활발하게 진행되고 있으며 한국 원자력연구원 또한 핵확산저항성이 우수한 장점으로 인해 집중적으로 연구를 진행하고 있다. 전해정련공정(Electrorefining process)은 파이로프로세스의 핵심공정 중 하나로 사용후핵연료의 약 93wt% 정도를 차지하는 우라늄을 처리하는 중요한 공정이다 [1]. 전해정련반응기는 LiCl-KCl- UCl_3 공용용염을 매질로 이용하여 전기화학적으로 양극 내 금속 혼합물에서 음극으로 순수한 우라늄을 회수는 장치이다. 전해정련공정의 우라늄 회수 수율은 인가되는 전류량에 의해 결정되므로 수율을 높이기 위해서는 인가전류를 높여야 하나 양극의 cut-off 전위에 의해 인가전류는 제한되어진다. 한편, 전류는 양극의 표면에 비례하므로 양극의 면적을 최대한 확보하는 것이 중요하다. 따라서 양극에 채워지는 금속전환체의 형태에 따라 양극 표면적이 달라지므로 전해정련의 수율에 영향을 미침을 알 수 있다. 이번 연구에서는 양극에 채워지는 원료 물질의 형태에 따라 전해정련공정에 미치는 영향과 그 특성을 알아보려고 하였다.

2. 실험방법

본 실험에 사용된 20kgU/batch 규모의 고효율 전해정련 실험 장치는 Fig. 1과 같다. 전해정련장치는 금속 우라늄이 적재되는 양극과 우라늄이 전착되는 음극으로 구성되어 있으며 반응 매질로는 LiCl-KCl 용융염을 사용한다. 초기 정련운전을 위해 LiCl-KCl 용융염에 약 6% 농도의 UCl_3 를 유지하도록 하며 조업온도는 500 °C이다. 양극은 환형 형태로 반응기 외벽에 가까이 위치하며 4개의 카트리지로 타입으로 설계하여 전극면적을 증대시키면서 교체가 용이하도록 하였다. 본 연구

를 위해 반응기 내에 장입되는 원료를 직경 10mm, 길이 10mm인 펠렛 형태의 금속과 전해정련에 의해 생성된 덴드라이트 형태인 우라늄전착물을 이용하여 양극 내 채워지는 충전밀도 및 그에 따른 전해정련 특성 실험을 수행하였다.

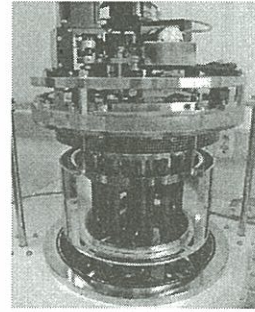


Fig. 1. High-throughput electrorefiner.

3. 결과 및 고찰

3.1 양극 내 금속 형태에 따른 전류-전위 곡선

양극에 채워지는 금속의 형태 및 크기에 따라 양극 충전밀도가 변하게 되며 또한 그 표면적이 달라지게 된다. 이번 연구에서는 직경 10mm, 길이 10mm인 금속펠렛과 전해정련을 통해 전착된 우라늄 덴드라이트를 각각 양극에 충전하여 전류-전위곡선을 측정하여 최대인가전류를 고찰하였다. 특히 우라늄 덴드라이트를 충전한 경우 우라늄 덴드라이트를 탭핑에 의해 충전한 것과 강제적으로 충전한 것을 정련실험을 수행하여 그 결과를 비교하였다. Fig.2는 금속펠렛을 장입한 것과 우라늄 덴드라이트를 장입했을 때의 전류-전위곡선을 측정한 결과를 나타낸다. 같은 양극 부피에 금속펠렛과 우라늄 덴드라이트를 채웠을 경우 각각 32와 6.6kg이었다. 이 때 충전밀도는 각각 8.2와 1.7 g/cm³이다. 충전밀도가 줄어들면서 양극 표면적이 감소하여 전류-전위곡선이 우측으로 이동하여 최대인가전류가 감소함을 확인할 수 있었다. 그리고 Fig.2에서 보는 바와 같이 우라늄 덴드라이트를 강제 충전시켜 충전밀도를 증가시

켰을 경우 전류-전위곡선이 금속펠렛을 충전했을 때와 유사하거나 같은 양극전위에 대해 오히려 높은 전류를 나타냄을 확인하였다. 이로부터 충분한 양극 표면적이 확보되었음을 알 수 있다. 따라서 입자가 작을 경우 충전밀도를 증가시킬 수 있는 방안이 필요하다. 충전밀도가 낮을 경우 최대인가전류가 감소하여 수율이 낮아지며 같은 수율을 위해서는 자주 양극을 교체해야 하기 때문에 수율 측면에서 불리함을 알 수 있다.

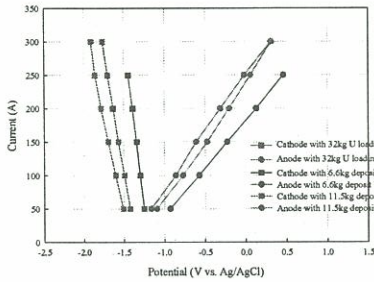


Fig. 2. Current-potential curves with respect to the anode material.

3.2 양극 내 금속 형태에 따른 전해정련 실험

양극에 우라늄 덴드라이트를 탭핑에 의해 충전한 경우와 강제적으로 충전한 경우에 대해 일정 전류 200A를 인가하여 각각 3회, 4회 전해정련 실험을 수행하였다. 그 결과를 각각 Fig.3과 Fig.4에 나타내었다. 우라늄 덴드라이트를 탭핑에 의해 충전한 경우, Fig.3에서 보는 바와 같이 정전류 정련실험을 거듭할수록 양극전위가 증가함을 알 수 있다. 양극 표면적이 급속도로 감소하기 때문이다. 반면 Fig.4에서 보는 바와 같이 강제적으로 충전한 경우 4회에 걸쳐 정련실험을 수행하였지만 양극전위가 거의 변화지 않음을 관찰할 수 있었다. 양극전위를 유지할 수 있는 충분한 표면적이 확보되었기 때문이다. 입자가 작을 경우 충전 밀도가 충분히 확보될 경우 양극 전위 측면에서 유리함을 알 수 있다. 하지만 양극용해 기준 전류 효율을 보면 금속펠렛 경우의 약 80%인데 반해 우라늄 덴드라이트 경우 탭핑 충전과 강제 충전의 경우 각각 136, 117% 임을 알 수 있었다. 이로부터 양극 내 우라늄 덴드라이트의 입자가 작아서 양극 바스켓의 메쉬 사이로 빠져 나갔음을 알 수 있다. 따라서 양극 내 충전하는 입자의 크기가 작을 경우 충전밀도를 증가시켜야 할 뿐 아니라 양극 바스켓에서 빠져 나오지 않도록 충분히 제어할 수 있는 방안이 필요함을 확인할 수 있다.

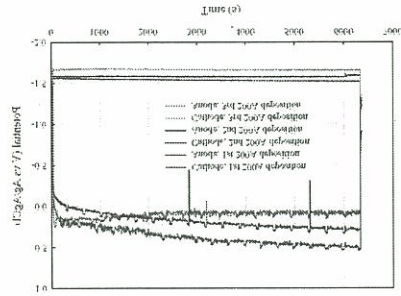


Fig. 3. Electrorefining of U with U deposit in anode basket by tapping

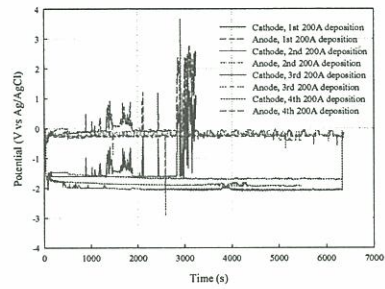


Fig. 4. Electrorefining of U with U deposit in anode basket by forced packing.

4. 결론

양극 내 충전되는 금속 형태에 따라 전류-전위 곡선을 측정하여 충전 밀도 및 양극 표면적 변화에 따른 최대인가전류를 확인하였고 전해정련 실험 진행에 따른 양극전위 변화를 고찰하였다. 양극 내 충전 물질의 입자가 작을수록 전해정련 수율 향상을 위해 충전밀도를 높이며 입자가 양극을 빠져나가지 않도록 하는 방안이 필요함을 확인할 수 있었다.

5. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부에서 주관하는 원자력중장기계획사업의 일환으로 수행하였습니다.

6. 참고문헌

[1] J. J. Laidler et al., Prog. Nucl. Energy, 31, pp.131-140 (1997).