

RAR 공정 lab-scale 장치 시험

김지용, 심준보, 박대엽, 윤달성, 김경량, 김택진, 김시형, 백승우, 안도희
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 kiv82@kaeri.re.kr

1. 서론

원자력에너지는 자원문제를 해결하기 위한 친 환경적인 에너지원으로 각광받고 있다. 그러나 이에 따른 부산물인 사용후핵연료의 처리문제도 함께 발생하고 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위한 사용후핵연료 재활용기술의 하나로 검토되고 있는 파이로 프로세스는 기존의 처리기술에 비해 핵확산성이 상대적으로 높으며 경제적이란 이유로 사용후핵연료를 환경 친화적으로 관리하기에 적합한 기술로 인식되고 있다. 파이로 프로세스의 전해제련 (electrowinning) 공정에서는 액체 카드뮴 음극 (Liquid Cadmium Cathode) 을 사용하여 전해정련 후 잔여 우라늄과 TRU를 함께 회수한다. 파이로 프로세스에서 발생하는 폐기물 내 악티늄족 원소를 최소화하기 위해서 이를 효과적으로 회수할 수 있는 RAR (Residual Actinides Recovery) 공정의 확립이 필요하다.

본 연구에서는 RAR 공정의 lab-scale 장치에서 특성 시험을 통해 RAR 공정의 조업조건에 따른 회수거동 및 예상치 못한 문제점 등을 파악하고자 하였다.

2. 본론

2.1 실험장치 및 방법

RAR 실험에 사용된 lab-scale 실험장치는 Fig.1에 나타내었다. 악티늄족 원소는 U를, RE원소는 Nd, Ce, La를 선정하고, 용융염의 농도는 각 0.2-0.4 wt%, 교반속도는 50-70 rpm, 전류밀도는 10-50 mA/cm² 및 Mo봉과 glassy carbon 재료의 양극을 사용하였다. 산화추출 실험에서는 전해에 의해 LCC에 과량으로 동반 석출된 RE 금속을 용융염 속으로 재 용해시키기 위해 첨가하는 산화제의 양에 따른 U 잔류농도 변화를 측정하였고, 용융염 속에 넣는 CdCl₂의 양을 LCC에 동반 석출된 RE 총량의 50, 75, 95 %가 산화되도록 단계별로 증가시켜 RE 금속만이 선택적으로 산화추출하였다. 산화 추출된 RE 금속의 염화물 생성 변

화량을 파악하고 CV 피크의 형태변화를 관찰하였다.



Fig. 1. Lab-scale RAR apparatus

2.2 결과 및 고찰

Lab-scale 장치에서 제 1차 RAR 실험을 수행하면서 몇 가지 문제점들이 파악되었다. Fig.2에서 보는 바와 같이 전해회수 단계에서 U 및 RE 3종의 대부분을 LCC에 회수된 것을 확인하였다. 그러나 전해 차수가 경과함에 따라 CV 그래프의 수평기준선이 점점 기울어져 나타났다. 이것은 용융염 속에 산소 또는 수분이 존재하기 때문이라고 생각된다. 또한 4차 전해단계 말기에 LCC 전위가 점차 증가함을 보였는데 전해 종료 후 교반기의 상부 날개에 전착물이 형성되었음을 확인하였으며, 이와 같은 현상은 알루미늄으로 제작된 교반날개에 전착물의 일부가 부착되어 전해과정에서 LCC와 통전되었기 때문에 일어난 것으로 판단된다. 후속단계로 이루어진 1-4차 산화추출과정에서 1차 산화 시에 검출되었던 RECl₃ 피크가 산화 차수가 경과함에 따라 증가하지 않고 오히려 감소되어 4차 단계에서는 모두 사라졌으며, 이는 이전 단계인 4차 전해에서 나타났던 용융염 속에 수분이 RE 염화물의 산화에 작용한 것으로 판단된다. 초기에는 없었던 수분의 증가 원인은 산화제로 첨가한 CdCl₂ 시약에 포함되었던 것으로 추정된다.

제 2차 RAR 실험은 선행실험 과정에서 겪었던 오류사항을 수정하여 진행하였다. 이 실험에서는

4차 산화 후에 RE 금속의 피크 이외에 U의 피크는 보이지 않았으며, RAR 공정 시험을 완료할 수 있었다.(Fig.3) 그러나 CV 그래프에서 수평기준선이 계속 기울어진 상태로 측정되었는데 이것은 실험에 사용하는 용융염 및 금속염화물의 시약을 사전에 충분히 건조 처리하는 것이 필수적임을 보여주는 결과이다. Lab-scale 장치에서 1-4차에 걸쳐 LCC 전해회수(16hr) 및 산화추출(36hr)을 진행하여 측정된 RAR 거동은 bench-scale 장치에서 얻은 결과와 유사함을 확인할 수 있었으며, 단지 규모가 확장됨에 따른 RAR 조절 시간이 약간 더 길어졌다. 한편 On-line CV 검출 결과 기중 및 용융염에서 수분 및 산소제어가 회수거동에 매우 민감함을 확인하였다. 용융염이 산화적 분위기일 때 금속염화물이 산화물로 쉽게 전환될 수 있어 이를 방지하기 위하여 사전에 확인할 수 있는 시스템의 확보가 공정 조절의 성공을 위해 필수적이다.

3. 결론

RAR 공정의 Lab-scale 장치 시험 결과 소규모 장치 시험에서 얻은 RAR 거동과 유사하였다. RAR 장치의 On-line CV 검출 방법을 이용한 주기적인 모니터링 시험 결과 PRIDE 장치와 같은 규모가 확장된 시스템의 경우 Ar 분위기 및 용융염에서 수분과 산소의 농도 제어가 RAR 회수거동에 매우 민감함을 확인하였다. LiCl-KCl 공융염을 PRIDE 장치에서 대량으로 사용할 경우, 용융염 시약의 전처리 과정을 통해 승은시켜 충분히 수분을 제거하는 것이 매우 중요하다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

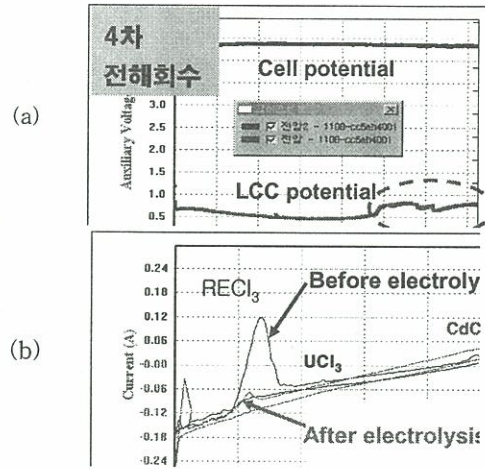


Fig. 2. (a) Monitoring of potential (b) CV result before/after electrolysis

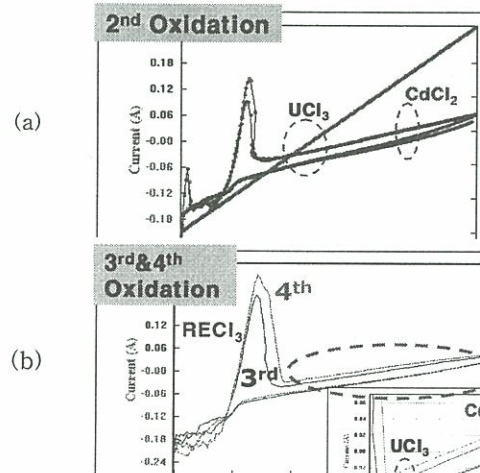


Fig. 3. (a) 2nd oxidation (b) 3rd/4th oxidation