

## 고온 용융염 내 $Nd^{3+}$ 농도에 따른 전기화학적 반응

배상은, 김대현, 김중운, 조영환, 박용준, 송규석  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045  
 sks@kaeri.re.kr

### 1. 서론

사용후핵연료 파이프 공정 기술의 성공을 위해서는 용융염 내 존재하는 악탄족 및 란탄족 화학종에 대한 화학적, 물리적 특성 조사가 필수적으로 요구된다. 현재 한국원자력연구원을 중심으로 다양한 용융염 매질, 온도, 대상 핵물질 원소에 대한 전기화학적 도금, 전기화학/분광학 일체형 시스템(Fig. 1)을 이용한 산화상태 변화, 용융염 물성, 화학종 규명에 대한 연구가 진행되고 있다.

파이프 공정 중 전해정련 공정은, 약 9 wt%의  $UCl_3$ 가 녹아 있는 고온 용융염에서 우라늄 원소의 전기화학적 도금 반응을 이용하여 사용후핵연료에 들어있는 우라늄 원소를 회수하는 전기화학적 공정이다. 공정이 진행함에 따라 고온 용융염 내 우라늄 원소의 농도는 점차 감소하며 일정 농도 이하로 감소하면 고온 용융염을 전해제련 공정으로 이송하여 남아있는 유용한 악탄족 및 란탄족 원소를 다시 전기화학적 도금법을 이용하여 회수한다. 원활한 공정 운영을 위해서 공정 반응 중 전기화학적 환경에 따른, 고온 용융염 내에 녹아 있는 악탄족, 란탄족 원소들의 전기화학적 특성변화뿐만 아니라 전기화학적 도금에 의해 회수되는 용질의 농도 변화에 대한 정보 등은 꼭 확보하여야 한다.

본 연구에서는 고온 용융염 내 녹아있는 용질의 농도에 따른 전기화학적 신호 특성을 연구하기 위하여 고온 용융염에  $Nd^{3+}$ 의 농도에 따른, 순환전압전류법, 직각과 전압전류법 등 다양한 전기화학적 측정법의 신호 특성을 측정하여 보고하고자 한다.

### 2. 실험

$LiCl-KCl$  고온 용융염 내 전기화학 실험은 아르곤 기체를 채운 글러브 박스에서 모든 실험을 수행하였다. ( $H_2O < 1ppm$ ,  $O_2 < 1ppm$ ) 글러브 박스 하단부에는 온도를  $500^\circ C$  이상 유지할 수 있는 전기로를 부착하여 고온 용융염 실험 환경을 구성하였다.

$LiCl-KCl$  공융염과  $NdCl_3$  등의 시약은 알드리치사에서 구입하여 전처리 없이 사용하였다.

전기화학 셀은 석영관을 이용하여 제작하였고 작업 전극으로는 텅스텐선을, 기준전극으로는 1 wt%  $AgCl$ 이 녹아있는  $LiCl-KCl$  공융염에 은선을 넣어 사용하였다. 포텐시오미터는 Gamry사의 Reference 3000과 Autolab사의 PGSTAT장비를 사용하였다.

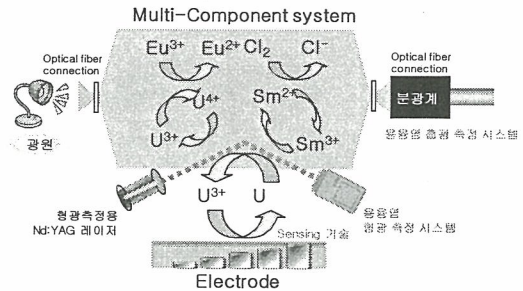


Fig. 1. Concept of an spectro-electrochemical measurement system in a high temperature  $LiCl-KCl$  molten salt medium.

### 3. 결과

Fig. 2는  $500^\circ C$ 의  $LiCl-KCl$  고온 용융염에  $NdCl_3$ 를 녹이기 전과 후에, 텅스텐을 작업전극으로 사용하여 측정된 순환전압전류곡선이다.  $NdCl_3$ 를 넣기 전에는  $-2.4 V$  영역의  $Li$  도금, 해리 반응에 기인한 날카로운 전류 신호가 나타나며  $NdCl_3$ 를 첨가한 후에는 음의 방향 주사에서  $-2.1 V$ , 양의 방향 주사에서  $-1.9 V$  전위에서 환원, 산화 전류 신호가 각각 나타난다. 이는 전기화학적 도금, 해리 반응의 전형적인 전류 형태로서  $Nd^{3+}$ 의 전기화학적 도금, 해리 반응에 기인한 전류 신호임을 알 수 있다.

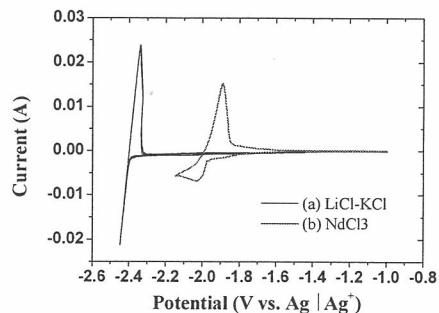


Fig. 2. Cyclic voltammograms obtained from W wires in  $LiCl-KCl$  melt at  $500^\circ C$ . (a) 0 wt% (b) 9 wt%  $NdCl_3$ .

Fig. 3은  $LiCl-KCl$  고온 용융염에 녹아있는  $NdCl_3$ 의 농도에 따른 순환전압전류 곡선을 보여

주고 있다. Fig. 2와 같은 전위 범위에서  $Nd^{3+}$ 의 전기화학적 도금, 해리 반응에 기인한 전류 신호를 나타내고 있으며 고온 용융염에 녹아있는  $Nd^{3+}$ 의 농도가 증가함에 따라 도금, 해리 반응의 전류가 모두 증가함을 보여주고 있다.

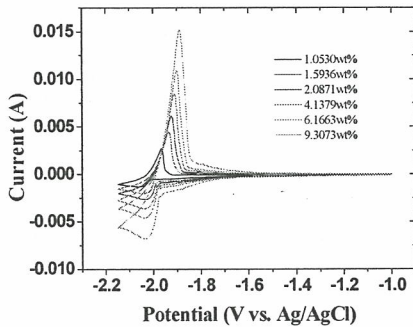


Fig. 3. Cyclic voltammograms obtained from W wires in LiCl-KCl melt containing various concentrations of  $NdCl_3$  at 500 °C.

Fig. 4는 Fig. 3에서 얻은 순환전압전류곡선의 전류 신호 값을 고온 용융염에 녹아있는  $Nd^{3+}$ 의 농도의 함수로 나타낸 그래프이다. 순환전압전류곡선의 전류 신호는 고온 용융염에 첨가한  $NdCl_3$ 의 농도에 따라 선형적으로 증가하나 약 2 wt% 농도 이상에서는 보다 낮은 기울기로, 선형적으로 증가한다.

#### 4. 토의 및 결론

$Nd^{3+}$ 가 녹아있는 고온 용융염에서 측정된  $Nd^{3+}$ 의 순환전압전류곡선의 전류 신호는 용융염 내  $Nd^{3+}$ 의 농도에 따라 두 개의 기울기를 가지며 선형적으로 증가한다. 이러한 경향은 직각과 전압전류곡선에서도 이미 보고된 바 있으며 낮은 농도에서는 확산에 의해 반응이 지배되고 고농도에서는 전극/용융염 계면에서의 전자 전이가 전기화학 반응을 지배하기 때문일 것으로 예상된다. 더하여 본 발표에서는 고온 용융염에 녹아있는 용질의 농도에 따른 직각과 전압전류법 등 다양한 전기화학적 측정법을 수행하여 보고하고자 한다.

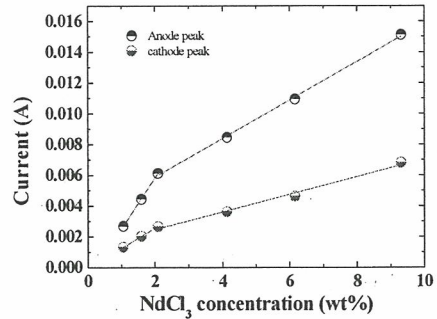


Fig. 4. Anodic and cathodic peak current as a function of  $NdCl_3$  concentration dissolved in LiCl-KCl molten salt.

#### 4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업의 지원받았습니다.

#### 5. 참고문헌

- [1] T. Inoue and L. Koch, *Nucl. Eng. & Technol.*, **40**, pp 183, 2008.
- [2] J. H. Yoo, C. S. Seo, E. H. Kim and H. S. Lee, *Nucl. Eng. & Technol.*, **40**, pp 581, 2008.
- [3] Y. I. Chang, *Nucl. Technol.*, **88**, pp 129, 1989
- [4] Y-H. Cho, T-J. Kim, Y-J. Park, H-J. Im, K. Song, *J. Lumin.* **130** pp 280, 2010.
- [5] M. Iizuka, T. Inoue, O. Shirai, T. Iwai, and y. Arai, *J. Nuc. Mater.* **297** pp 43, 2001.