

RAR공정의 전해제련 연계 통합 전해회수 시험

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

1. 서론

누적되는 사용후핵연료의 처리 문제를 해결하기 위해 사용후핵연료 재활용 기술의 하나로 검토되고 있는 파이로 프로세스는 기존의 처리기술에 비해 핵확산성이 상대적으로 높으며 경제적인 이유는 사용후핵연료를 환경 친화적으로 관리하기에 적합한 기술로 인식되고 있다. 파이로 프로세스의 전해제련(electrowinning) 공정에서는 액체 카드뮴 음극(Liquid Cadmium Cathode, LCC)을 사용하여 전해제련 후 잔여 우라늄과 TRU를 함께 회수한다. 전해제련 후에 발생하는 용융염 폐기물 내 악티늄족 원소를 최소화하기 위해서 잔류 악티늄족 회수 (RAR: Residual Actinides Recovery) 공정이 도입되었으며, TRU의 회수율 및 공정 효율을 높이기 위한 기술의 확립이 필요하다.

본 연구에서는 RAR 공정의 전해회수 단계에서 선행 공정인 전해제련과 연계성을 모색하기 위해 전해제련-RAR 통합 전해회수 실험을 수행하여 회수거동 및 그 가능성 등을 조사하였다.

2. 본론

2.1 실험장치 및 방법

전해제련 공정은 LCC를 이용하여 용융염 내 TRU 등 악티늄족의 농도가 약 3~5 wt% 정도일 때 적용하지만, RAR 공정은 전련 후 남아있는 1 wt% 이하의 악티늄족 원소를 회수하기 위해 적용하며 농도 범위에서 큰 차이가 있다. 그러나 용융염 중에 희토류 원소의 농도는 큰 차이가 없으며 약 3 wt% 내외의 농도로 유지된다. 따라서 전해회수 시에 사용하는 전류밀도의 범위에서도 두 공정 사이에 큰 차이가 있다.

전해회수 실험을 위해 먼저 LiCl-KCl 용융염 내에서 UCl_3 의 농도를 3.5 wt%가 되도록 제조하였다. 그 후 $NdCl_3$ 및 $LaCl_3$ 를 각각 1.0 wt%가 되도록 충분히 건조한 순도 4N 시약을 첨가하였다. LCC는 용융염 속에 순도 5N의 Cd 잉곳 2개

(209.96 g)를 넣고 용융시킨 뒤 UCl_3 를 전해하여 LCC 속에 U을 약 1.25 wt%가 되도록 전착시켜 준비하였다. 제련-RAR 통합 전해회수 실험은 전류밀도를 일정 시간 간격으로 단계별로 낮추면서 순차적으로 100, 80, 60, 40, 20, 10 mA/cm²로 인가하여 진행하였다. 각 단계에서 전해회수 시간을 11, 13, 17, 26, 26, 51 분씩 적용하였다. 용융염 및 LCC의 교반속도는 50 rpm이었으며 용융염의 변화를 on-line 감시하기 위해 전해회수 전·후에 Cyclic Voltammetry (CV) 기법으로 측정하였으며, UCl_3 및 $RECl_3$ 가 전착에 의한 감소되는 상태 변화를 확인하고 이와 더불어 용융염 시료를 채취하여 ICP 정량 분석도 병행하였다. 실험은 수분 및 산소 농도가 3 ppm 이내로 유지되는 불활성 분위기의 아르곤 가스가 충전된 글로브박스 내에서 수행하였다.

2.2 결과 및 고찰

폐용융염 RAR 공정장치 개량 및 성능 시험의 일환으로 TRU를 회수하는 LCC 전해제련 및 RAR 전해회수 조업을 통합시켜 연계 조업의 타당성을 확인하고자 하였다.

잔류 악티늄족 원소의 전해회수 조업의 개선 과정에서 채택했던 Li 금속의 생성을 억제시키고 LCC에서 RE 금속의 전착량을 감축시켜 주는 목적으로 단계별로 전류밀도를 점차 낮추어 가능한 전류효율을 높게 유지시키는 방식을 전해제련-RAR 연계시키는 통합 전해에 확장하였다.

악티늄족의 농도가 약 4 wt% 내외의 용융염에 적용하는 전해제련의 경우 100 mA/cm²의 전류밀도를 사용하여 정전류 방식으로 전해를 진행하는 반면, 약 1 wt% 이내의 용융염을 처리하는 RAR 전해의 경우 30 mA/cm² 내외의 전류밀도를 사용하여 정전류 방식으로 전해를 사용하여 왔다.

따라서 본 실험에서는 전류밀도 100 mA/cm²에서부터 시작하여 1차~6차까지 단계별로 전류밀도를 점차 낮춰가며 전해 실험하면서 전해 전·후의 CV측정 결과 및 ICP를 이용한 용융염 내 농도변화 분석 결과도 얻었다. 1,2차 전해 후에는 U

의 피크가 크게 감소하였지만 RE 금속의 피크는 크게 변화하지 않았다. 3차~5차에 걸쳐 진행된 전해 단계에서 U의 농도는 전해 전의 농도(3 wt%)에 비해 10 % 이하로 크게 감소(0.25 wt%) 하였지만, Nd 및 La 등 RE의 농도는 각각 초기 농도(1 wt%)의 약 60 % 이상으로 유지되고 있음 (Nd는 0.63 wt%, La는 0.64 wt%)을 확인할 수 있었다. 6차 전해 후에 U의 잔류 농도는 약 154 ppm으로 측정되었다. 이 결과로부터 RE 금속의 전착을 억제시키고 U 만을 선택적으로 전해 회수 하기 위한 단계별 전류강하 방식의 전해 조업이 매우 효과적임을 파악할 수 있었으며, 전해제련-RAR 연계 조업을 채택할 경우에도 U의 잔류농도를 RAR 공정의 목표치인 100 ppm 이하로 낮출 수 있는 가능성도 파악하였다.

3. 결론

단계별로 전류량을 강하시키는 전해회수 방식을 적용하여 전해제련 및 RAR 공정을 연계하는 통합전해 시험을 수행하여 그 가능성을 확인하였다. 이와 같은 연계 전해 조업을 통해 희토류 금속의 동반 전착량을 크게 감축시킬 수 있다. 또한, 두 종류의 공정이 전해조를 별도로 사용하지 않고 1개에서 통합하여 연속적으로 사용하기 때문에 전해제련 및 RAR용 2개의 전해조를 사용할 때 필요로 하는 용융염의 냉각, 이송, 가열 및 용융 등의 조업단계를 생략할 수 있어 공정 절차가 간소화되고 조업 시간도 크게 단축시킬 수 있다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.