

LCC의 악티늄족 회수량 향상을 위한 연구

윤달성, 김시형, 김가영, 백승우, 김택진, 김광락, 심준보, 정채후, 안도희

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

yds0127@kaeri.re.kr

1. 서론

전해제련공정은 정련공정 후 LiCl-KCl 염에 잔류하는 우라늄과 악티나이드 원소들을 액체카드뮴음극(LCC, Liquid Cadmium Cathode)을 이용하여 회수하는 공정이다. 액체카드뮴을 음극으로 사용할 경우, 우라늄과 악티나이드 원소를 동시에 회수함으로써 파이로공정의 핵확산 저항성을 입증하는 중요한 공정으로 인식되고 있다. 그러나 액체카드뮴음극을 사용하면서 악티나이드 원소뿐만 아니라 희토류 원소 또한 근접한 전위 범위에서 회수되며, 소듐냉각고속로의 연료로 사용하기 위해서는 이 희토류 원소의 회수를 최대한 억제해야 한다. 따라서 본 연구에서는 LiCl-KCl 용융염 내에서 우라늄과 Nd(Neodymium)원소를 액체카드뮴음극을 이용하여 회수하는 실험을 하였으며, 정전류 실험을 통하여 악티나이드 원소의 회수량을 증대시키는 공정변수를 최적화하기 위해 연구를 수행하였다.

2. 실험 및 결과

본 연구를 수행하기 위하여 Fig. 1(a)와 같이 소형 액체카드뮴 음극(LCC; Liquid Cadmium Cathode) 셀을 제작 하였으며, 참조전극 (Ag/Ag⁺)과 양극전극 (Mo Φ3mm)으로 구성되어 있다. Pyrex 튜브를 Fig. 1(b)와 같은 모양으로 제작하여 액체 카드뮴 음극으로 사용하였다. 초기 용융염 전해질은 LiCl-KCl-2wt% UCl₃-2.4wt NdCl₃이며, 정전류법을 이용하여 전착 실험을 수행하였다. 전해실험은 Fig. 2와 같이 50mA/cm², 80mA/cm², 100mA/cm²의 전류밀도 (Q=278.7mAh)로 수행되었으며, 전착 전, 후 그리고 약 20시간 동안 annealing 후 sampling 하였다. 전해 후 용융염 내에 남아 있는 우라늄과 희토류원소의 양을 cyclic voltammetry법을 이용하여 정성적으로 분석 하였으며, 추후 화학분석법을 통하여 정량분석을 할 예정이다.

전류밀도 100, 80, 50mA/cm²에서 전착 전, 전착 후, annealing 후의 cyclic voltammogram을 Fig. 3-5

에 각각 나타내었다. 전착이 끝난 후 우라늄의 산화/환원 peak current가 줄어든 것을 볼 수 있었으며, 이로 인해 초기 salt에 존재하는 우라늄이 액체음극으로 회수된 양을 정성적으로 예측할 수 있었다. 전류밀도를 100mA/cm²으로 전해실험을 할 경우 우라늄 환원 peak current는 약 6.3mA, 80mA/cm²은 약 8.8mA, 그리고 50mA/cm²은 12.08mA만큼 낮아졌다. 따라서 인가되는 전류밀도가 낮을수록 우라늄의 회수율이 높은 것을 알 수 있었다. 또한 Nd의 경우에는 LiCl-KCl salt 내에 CdCl₂의 영향으로 다중산화 peak를 보이면서 전해 전후의 peak current의 차이를 가늠하기 힘들었으나 전류밀도가 높을수록 Nd가 함께 회수되는 양이 많아지는 것은 확인할 수 있었다. 전착이 끝난 후 500°C의 salt내에 유지 시키면서 annealing을 할 경우 액체카드뮴음극 표면에 전착된 우라늄과 Nd가 식(1)-(3)의 반응을 따른다. 또한 전착이 진행되면서 양극표면에서 발생된 Cl₂ gas는 식(4)와 같이 액체카드뮴과 화학반응을 통해 CdCl₂를 생성하며, CV를 통해 이를 확인 할 수 있었다.

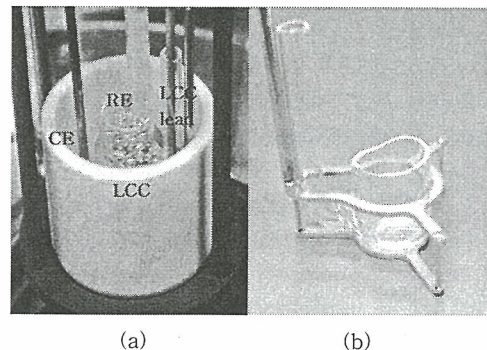
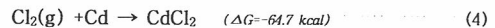
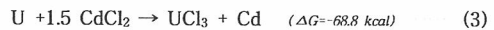
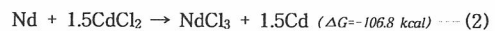
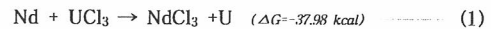


Fig. 1. Alumina electrolysis cell (a) and pyrex cathode crucible (b).

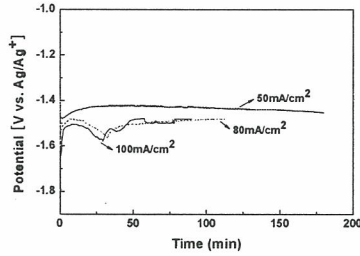


Fig. 2. Variation of cathode potential at 50, 80, 100mA/cm² on liquid Cd.

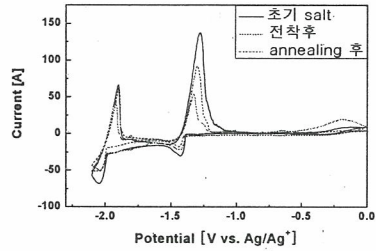


Fig. 3. Cyclic voltammograms in the procedure galvanostat at 100mA/cm².

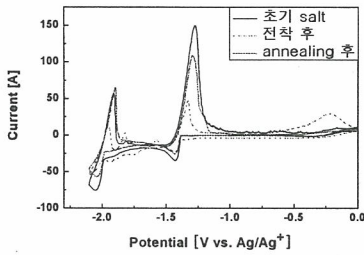


Fig. 4. Cyclic voltammograms in the procedure galvanostat at 80mA/cm².

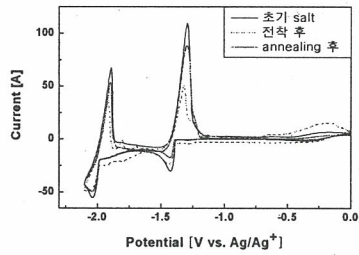


Fig. 5. Cyclic voltammograms in the procedure galvanostat at 50mA/cm².

3. 결론

본 연구는 액체카드뮴음극을 이용하여 보다 효율적으로 악티나이드 원소를 회수하고 희토류 원소의 공 회수를 억제하기 위한 운전범위를 설정하기 위해 수행되었다. 80mA/cm² 이하의 낮은 전류밀도로 전해를 할 경우 우라늄의 회수율이 보다 높았으며, 효율적으로 Nd의 전착을 방지 할 수 있었다. 또한 저 전류밀도에서 액체카드뮴음극으로 회수된 Nd는 annealing을 통해 다시 salt로 추출 되는 것을 확인하였다. 그러나 전류밀도는 공정의 처리시간에 관련하므로 향후 화학분석을 통하여 보다 정량적으로 회수량을 측정하고, 이를 바탕으로 최적의 전류밀도 범위를 설정해야 할 것이다. 그리고 전해가 진행되면서 양극전극에 발생하는 Cl₂ gas는 액체카드뮴 음극뿐만 아니라 전해제련 장치 내의 구조와도 반응하므로 shroud와 같은 양극구조가 설계되어야 할 것이다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.