

LiCl-KCl-UCl₃ salt 제조 및 잔류 카드뮴 제거방법

우문식, 진형주, 이한수, 김정국

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 989번길 111

mswoo@kaeri.re.kr

1. 서론

삼염화우라늄(UCl₃)은 LiCl-KCl 용융염계에서 전기화학적으로 우라늄 전해정련시 전극 간 전위안정화 및 순수한 우라늄금속을 전착시키기 위하여 전해정련조 전해질의 약 9wt%정도가 필요하다. UCl₃ 제조방법은 동일한 반응기 내에서 비중차에 의한 salt 하단에 위치한 카드뮴(Cd) 금속층에 염소가스(Cl₂)를 공급하여 카드뮴 금속과 반응시켜 이염화 카드뮴(CdCl₂)를 제조한 다음 다시 카드뮴 층 상부에 위치하는 LiCl-KCl salt 층에 우라늄 바스켓에 있는 우라늄금속과 반응시켜 UCl₃을 제조한다.[1] 상기 반응에서 우라늄 염소화 반응 후 발생하는 카드뮴 금속은 비중차에 의해 반응기 하단으로 이동하여 다시 염소화반응을 거치게 된다. 염소화 반응은 600°C에서 염소가스를 카드뮴 층에 공급하며 공급관은 스테인레스 스틸(STS) 보호관 안에 외경 3mm인 quartz 튜브를 삽입하였다.

- Cd 염소화반응 : $Cd + Cl_2 \rightarrow CdCl_2$
- U 염소화반응 : $3CdCl_2 + 2U \rightarrow 3Cd + 2UCl_3$

제조된 LiCl-KCl-UCl₃ 공용염에는 카드뮴 염소화 반응 후 잔존하는 카드뮴 및 카드뮴 화합물이 잔존하며 전해정련 공정에서 전극간 여러 가지 문제점을 발생시킨다. 따라서 본 연구는 제조된 공용염에 잔존하는 Cd와 Cd화합물을 제거하기 위하여 염소가스 공급을 중단 후 반응기내의 미 반응물의 반응용 완결 시키기 위하여 교반 및 상압에서 증류를 시켰다. 그리고 잔류 CdCl₂와 우라늄 금속과 반응 및 감압 증류 실험을 통하여 잔존 우라늄을 제거하였다.

2. 본론

2.1 실험 장치 및 실험

실험장치는 그림 1 과 같고 장치는 염소공급기, 염화물 제조 장치, 염이송장치, 펠렛제조장치, 배기체 흡수장치로 구성되어있다. 염화물 제조장치의 반응기는 내경이 80mm이고 높이는 250mm이

고 반응기 내부 하단은 원추형으로 제작되어 용융된 카드뮴이 반응기 중앙하부로 모이도록 하였다.

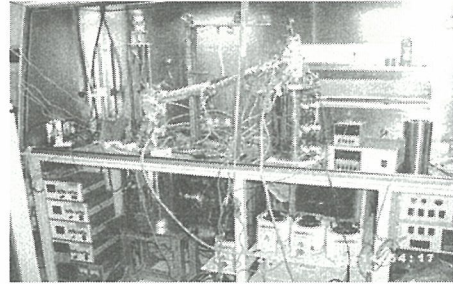


Fig. 1. Experimental equipment for making of uranium chloride.

시약은 Cd 금속과 LiCl-KCl salt 및 우라늄 금속을 각각 787g, 537g, 1,300g를 주입하여 600°C에서 제조하였다. 염화우라늄 제조를 위한 염소가스 공급속도는 불 타입의 기체유량계를 사용하여 300~400ml/min으로 공급하였다. 그리고 미반응기체의 배출관에 반응성을 측정하기 위하여 동일한 불 타입의 기체유량계를 설치하여 주입량과 배출량을 비교하여 반응성을 측정하였다. 제조반응은 72시간 동안 반응 시켰고, 반응시 주로 염소가스를 이용한 교반을 하였다. 그리고 제조된 LiCl-KCl-UCl₃ 공용염은 반응기에서 새로운 반응기로 이송하여 600°C에서 13시간 교반상태에서 증발시켰으며, 그리고 우라늄 basket에 우라늄 금속을 넣고 미반응 잔류 CdCl₂와 반응 시켰다. 마지막으로 600°C인 반응기에서 반응기 내부압을 60torr로 2시간 감압증류 시켰다. 각각의 잔류 Cd를 제거하기 위한 실험에서 잔류 Cd농도를 측정하기 위하여 2시간 간격으로 시료 채취하여 ICP 분석을 하였다.

2.2 실험 결과

600°C에서 카드뮴 및 우라늄의 염소화 반응의 반응성은 염소가스 유량계를 반응기 주입구와 배출구에 설치하여 측정결과 98%정도였다. 제조된 LiCl-KCl-UCl₃ salt에 잔류하는 Cd 금속은 초기

에는 약 30,000ppm 정도였다. 600°C에서 상압에서 13시간 증류 실험 결과 초기 Cd 농도 기준하여 31% 감소하였으나 Cd 금속은 2wt%가 존재하였다. 이것은 LiCl_2 의 미 반응으로 볼 수 있다. 그리고 우라늄 금속 반응을 6시간 수행한 결과 초기 농도 대비 30% 감소하여 Cd 농도가 1.2wt% 존재하였으나 효과적인 제거 방법은 되지 못하였다. 그러나 Fig.2와 같이 600°C, 60torr에서 2시간 감압 증류 시킨 결과 Cd 잔류 농도가 200ppm 까지 감소함을 보였다.

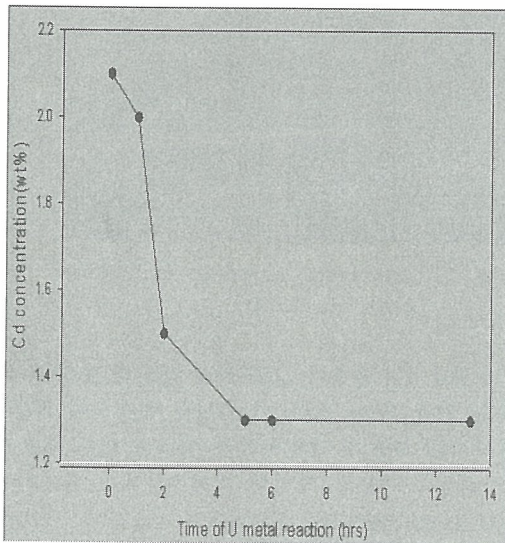


Fig. 2. Cd concentration in salt after reaction of residual CdCl_2 with U metal

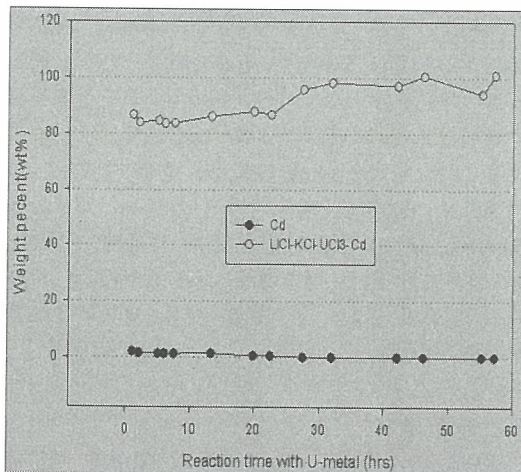


Fig. 3. Cd concentration in the final product by vacuum distillation at 600°C, 60torr.

3. 결론

UCl_3 제조를 위한 염소 반응시 염소화 반응은 약 98% 정도로 양호하였다. LiCl-KCl-UCl_3 공융 염에 잔존하는 Cd 금속을 제거하기 위하여 600°C에서 상압 증류방법으로 31% 감소하였고, salt 중에 잔존하는 Cd 농도는 2wt%이었다. 그리고 잔존하는 Cd 화합물과 우라늄 금속과 6시간 반응시킨 결과 30% 감소하여 Cd 농도는 1.2wt% 까지 감소시켰다. 그러나 600°C, 60torr에서 2시간 동안 감압 증류한 결과 200ppm 까지 감소함을 확인 하였다.

4. 참고문헌

- [1] Miller et al , "Method for Making a Uranium Chloride Salt Product", Patent No.: US 6,800,262B1, Date of Patent: Oct.5, 2004.