

## 실린더형 우라늄 산화물 펠렛의 전해환원 확산 모델

임현숙, 최은영, 박우신, 허진복

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 989번길 111

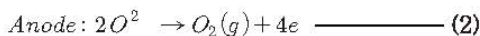
[ih95@kaeri.re.kr](mailto:ih95@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

현재 국가 전력 사용량의 40 % 이상을 생산하고 있는 상용원자로는 산화물 형태의 사용후핵연료(SF, Spent Fuel)을 방출하고 있다. 대표적인 SF 처리 기술은 용매 추출에 기반한 PUREX 공정이지만, 핵확산 민감성종인 악티나이드 핵종들을 분리하지 않은 채 우라늄을 재활용할 수 있는 파이로공정(Pyroprocessing)에 대한 연구도 지속적으로 연구되고 있다. 특히, 금속연료를 다루는 파이로 공정을 금속산화물 SF 처리에 적용하기 위해 고온 용융염 환경에서의 전기화학적 금속 환원 기술이 적용되었고, 그 결과 높은 전환율을 얻는 실험적 성과를 이루기도 했다. 그러나, 이에 비해 공정 해석과 공정 이해를 위한 모델 개발은 미진하였다. 본 연구에서는 Shrinking core model을 연료물질의 용이한 취급성과 높은 금속 전환율을 위한 basket 형태의 음극구성에 적용하였고, 서로 다른 크기의 펠렛의 금속전환 시간을 계산하였다. 또한, 실험결과와 그 경향을 비교하였다.

### 2. Model development

지금까지 다양한 연구 그룹에서 shrinking core model를 기저로 하여, 구형 혹은 실린더형 단일 펠렛에 대한 확산 모델 연구를 추진하였다[1-4]. 그러나, 모두 펠렛 중앙에 위치한 전류인가봉에서 생성된 Li이 외부방향으로 확산되면서 금속환원이 유도되는 형태로 본 연구단의 basket 형태의 cathode 구성에 적용할 수 없어 새롭게 재구성하였다. 본 공정은 고온(650 °C)의 LiCl-Li<sub>2</sub>O 용융염 전해질속에서 수행된다. cathode에서는 전기화학적 방법을 통해 생성된 Li이 확산 침투하여 우라늄 산화물과 화학적인 환원을 통해 우라늄 금속으로 전환되며, anode에서는 산소 기체가 발생한다. 전기화학적 반응은 다음과 같다.



추가로 Cathode에서 화학적인 우라늄 환원반응이 진행된다.

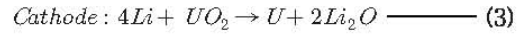


Fig. 1.은 실린더형 우라늄산화물 펠렛의 구조를 보여준다. 우라늄 산화물 펠렛을 담은 basket cathode에 전류가 인가되면, cathode에서 생성된 Li 금속이 펠렛 외부로부터 확산되어 내부로 침투하게 되고, 산화물 펠렛 표면에서 우라늄 산화물과 반응하여 우라늄 금속 환원을 유도한다. 이때, 농도 분포는 [4]식을 통해 유도된다.

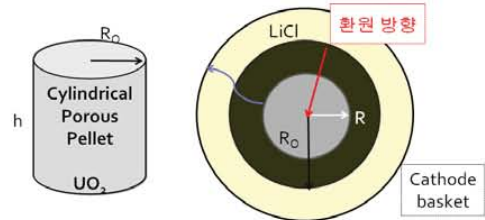


Fig. 1. Pellet geometry of the fuel basket containing UO<sub>2</sub>.

$$\frac{dC_{Li}}{dr} = \left[ \frac{C_{Li,s}(\ln r/R)}{(\ln R_o/R)} \right] \quad (4)$$

펠렛 표면을 통해 확산된 Li의 환원반응 결과 우라늄 금속량이 증가하는 만큼, 산화물의 반지름은 감소한다. 마침내 우라늄 산화물은 반지름 R이 '0'이 되는 지점에서 환원반응을 종료한다. 이를 적분하여 금속전환시간을 구한다.

Table. 1.에 주어진 다양한 크기의 펠렛에 대한 금속전환시간을 계산하였다.

Table. 1. Various Pellet sample sizes.

No.	pellet radius (Ro)	UO <sub>2</sub> Height	1-porosity
	mm	mm	-
1	3	8	0.55
2	4.5	8	0.6
3	4	8	0.7
4	4	7	0.8

### 3. 결론

Fig. 2는 앞서 제시된 실린더형 우라늄 산화물 펠렛의 확산모델의 결과들을 보여준다.

a/b/c 는 순서대로 펠렛의 반지름/높이/상대밀도를 나타낸다. 계산 결과, 샘플 펠렛의 상대적 밀도와 반지름이 금속 전환 시간에 동시적 영향을 주었다. 그러나, 실험적 금속환원 반응 시간과는 다소 편차를 보여, 화학반응의 반응속도 상수와 확산저항을 고려한 수정 모델 개발이 필요하다.

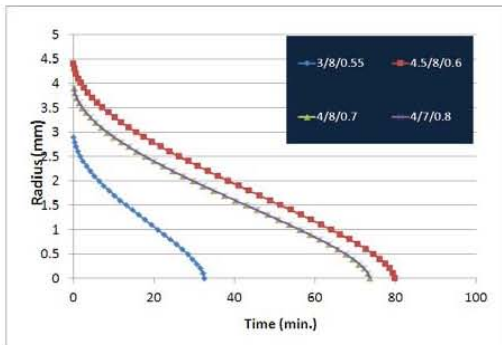


Fig. 2. Metal conversion time with each radius, height, and relative density.

### 4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

### 5. 참고문헌

[1] B. H. Park, J. M. Hur, H. S. Lee, J.Korean Radioactive Waste Society, Vol.8, No. 1, pp. 19-32, 2010.  
 [2] S. Phongikaroon, S. D. Herrmann, M. S. Simpson, Nuclear Technology, Vol.174, pp. 84-93, 2011.

[3] M. S. Simpson, S. D. Herrmann, Nuclear Technology, Vol.162, pp. 179-183, 2007.  
 [4] P. kar, J. W. Evans, Electrochimica Acta, Vol.53, pp. 5260-5265, 2008.