

# Effect of the Composition of a Reduced Fuel on the Concentration Change of $UCl_3$ in the Electrorefiner

## 금속전환체 조성의 전해정련 전해조 $UCl_3$ 농도변화에 대한 영향

Seungwoo Paek\*, Chang-Hwa Lee, and Sung-Jai Lee

*Korea Atomic Energy Research Institute, 111, Daedeok-daero 989beon-gil, Yuseong-gu, Daejeon, Republic of Korea*

백승우\*, 이창화, 이성재

*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로989번길 111*

(Received August 14, 2019 / Revised September 11, 2019 / Approved September 23, 2019)

The composition of the reduced fuel produced in the electrolytic reduction process of pyroprocessing affects the concentration change of  $UCl_3$ , an important operating variable of the electrorefining process. In this study, we examined the concentration change of  $UCl_3$  in the electrorefiner according to the content of TRU and RE elements in the reduced fuel and the concentration of  $Li_2O$  introduced in the electrorefiner accompanied with the reduced fuel. Considering only the TRU and RE elements, the concentration of  $UCl_3$  decreased with increasing the number of electrorefining operation batch. In order to operate one campaign (20 batches) of electrorefining process, it was found that additional injection of  $UCl_3$  should be conducted more than 3 times. On the other hand, the concentration of  $UCl_3$  in the electrorefiner changed significantly depending on the concentration of  $Li_2O$  and, accordingly the number of operable electrorefining batches decreased rapidly, showing that the concentration of  $Li_2O$  is an important operating variable in electrorefining. Therefore, the results of this study show that to maintain the concentration of  $UCl_3$  in the electrorefiner, the operation mode should be set by taking into account the effect of  $Li_2O$  as well as the TRU and RE elements contained in the reduced fuel.

Keywords: Electrolytic reduction, Reduced fuel, Concentration of  $Li_2O$ , Electrorefining, Concentration of  $UCl_3$

\*Corresponding Author.

Seungwoo Paek, Korea Atomic Energy Research Institute, E-mail: [swpaek@kaeri.re.kr](mailto:swpaek@kaeri.re.kr), Tel: +82-42-868-8099

### ORCID

Seungwoo Paek <http://orcid.org/0000-0002-1811-5450>

Chang-Hwa Lee <http://orcid.org/0000-0002-4624-5738>

Sung-Jai Lee <http://orcid.org/0000-0001-7639-1210>

파이로프로세싱의 전해환원공정에서 생산된 금속전환체의 조성은 전해정련공정 운전의 중요한 운전변수인 용융염 중  $UCl_3$ 의 농도변화에 영향을 미친다. 따라서, 본 연구에서는 금속전환체에 함유된 TRU와 RE 원소의 함량 및 금속전환체에 동반되어 전해정련 전해조에 유입될 수 있는  $Li_2O$  농도가 전해정련 전해조의  $UCl_3$  농도 변화에 미치는 영향을 검토하였다. 금속전환체의 TRU 원소와 RE 원소의 농도만을 고려하였을 때 전해정련 운전 batch 수 증가에 따라  $UCl_3$  농도가 감소하였다. 전해정련 1 campaign(20 batch)를 운전하기 위해서는  $UCl_3$ 를 3회 이상 추가 보충해야 함을 알 수 있었다. 한편, 금속전환체에 동반되어 전해정련 전해조에 유입되는  $Li_2O$ 의 유입량 증가에 따라  $UCl_3$  농도 감소의 영향이 크게 나타났으며, 이에 따라 운전 가능 batch 수가 급격히 감소하게 되어 전해정련 운전의 중요한 운전 변수임을 보여주었다. 이러한 결과는 전해정련 운전 중  $UCl_3$  농도 유지를 위해 금속전환체에 포함된 TRU 및 RE 원소뿐만 아니라 금속전환체에 동반되어 유입될 가능성이 있는  $Li_2O$ 의 영향도 고려하여 전해정련 운전모드를 설정하여야 함을 보여주었다.

중심단어: 전해환원, 금속전환체,  $Li_2O$  농도, 전해정련,  $UCl_3$  농도

## 1. 서론

파이로프로세싱은 고온(500 ~ 650°C)의 용융염에서 전기화학적 방법을 이용하여 우라늄과 TRU (Transuranic, 초우라늄) 원소의 유용한 핵물질을 분리·회수하여 고속증식로에서 재순환·소멸시킴으로써 고준위폐기물 양을 크게 감소시키기 위한 선진 핵연료주기 기술의 하나이다[1,2]. 가압경수로에서 발생하는 산화물 사용후핵연료를 고속로의 고속핵연료로 재활용하기 위해서는 금속으로 전환한 후 전해정련공정을 통하여 우라늄을 회수하게 된다. 산화물 사용후핵연료를 금속으로 전환시키는 공정이 전해환원공정이다. 한국원자력연구원에서는 650°C의  $LiCl$  용융염에서  $Li$ 에 의한 금속환원반응과  $Li_2O$ 의 금속  $Li$ 으로의 환원반응이 하나의 전해셀에서 동시에 일어나도록 결합시킨 기술을 연구하고 있다. 전해환원 공정에서 환원된 금속전환체를 이용하여 500°C의  $LiCl$ - $KCl$  공융염에서 전기화학반응을 이용하여 거의 순수한 우라늄만을 회수하는 공정이 전해정련공정이며 운전초기의 전위를 안정적으로 유지하기 위하여 일정농도의  $UCl_3$ 가 필요하다. 전해정련공정 운전 시에 사용후핵연료에 함유된 TRU (Transuranium)와 RE (Rare Earth, 희토류) 원소는 운전초기에 공융염에 주입된  $UCl_3$ 와 반응하여 염화물의 형태로 공융염에 축적되며, 이에 따라  $UCl_3$ 의 농도는 계속 감소하게 된다[3]. 한편 전해환원공정에 첨가된  $Li_2O$ 는 금속전환체의 동반 염 제거를 위한 증류공정에서 금속전환체의 재산화 반응을 일으키거나 증류공정에서 제거되지 않고

금속전환체와 함께 동반되어 전해정련공정으로 유입될 수 있으므로 이에 대한 연구가 최근 활발히 진행되고 있다[4-6]. 전해정련공정의 양극으로 이용되는 금속전환체에 동반된  $Li_2O$ 는 전해정련공정 전해조의  $UCl_3$ 와 반응하여 우라늄 산화물을 생성함으로써 전해조의  $UCl_3$  농도를 낮추게 된다. 전해조의  $UCl_3$  농도가 낮아지면 회수하는 우라늄에 TRU 및 RE 원소가 우라늄에 불순물로 동반될 수 있으므로 일정농도 이상의  $UCl_3$  농도 유지를 위해  $UCl_3$ 를 보충해 주어야 한다. 전해정련공정 전해조의  $UCl_3$  농도 유지는 전해정련공정의 효율적인 운전을 위해 관리되어야 하는 매우 중요한 운전변수이다. 따라서 본 연구에서는 전해환원공정의 생산물인 금속전환체의 조건(TRU, RE 및  $Li_2O$  농도)에 따른 전해정련 전해조의  $UCl_3$  농도변화를 예측하고,  $UCl_3$  관리방안을 제시함으로써 전해정련공정 운전의 효율향상에 기여하고자 한다.

## 2. 전해환원-전해정련공정 연계운전 특성

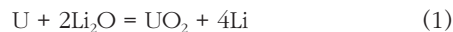
### 2.1 전해환원공정에서의 $Li_2O$ 거동

산화물 사용후핵연료를 금속으로 전환시키는 전해환원공정은  $LiCl$  용융염에서 리튬환원기술의 금속환원반응과  $Li_2O$ 가  $Li$ 로 전환되는 환원반응이 하나의 전해셀에서 동시에 일어나도록 결합시킨 기술이다. 전해환원공정에서 금속으로

Table 1. Content of major nuclide groups for spent nuclear fuel based on 50 kg/batch

Nuclide groups	Content (g)
U	46,470
TRU	682
(Pu)	(582)
RE	856

전환된 금속전환체는 후속 공정인 전해정련공정의 양극으로 이용되어 우라늄회수에 활용된다. 그러나, LiCl 용융염을 동반한 금속전환체를 직접 전해정련 전해조에 이용하게 되면 전해정련공정의 LiCl-KCl 공융염의 조성 변화를 일으키게 된다. 이러한 영향을 감소시키기 위해 잔류염을 제거하기 위한 고온 염증류 공정(salt distillation)을 거치게 된다[7-9]. 이때, LiCl은 제거되지만 Li<sub>2</sub>O는 매우 낮은 증기압으로 인해 제거되지 않는다[9]. 따라서, 금속전환체에 잔류하는 LiCl에 동반된 Li<sub>2</sub>O의 영향에 대한 연구들이 진행되고 있다[4-6]. 환원된 금속전환체는 증류공정을 거치며 동반된 LiCl염에 포함된 Li<sub>2</sub>O와 아래와 같은 반응이 일어날 수 있다.

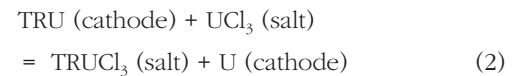


연구결과에 따르면 증류온도가 증가함에 따라 금속전환체와 Li<sub>2</sub>O의 반응성이 커지며 온도가 낮으면 동반된 Li<sub>2</sub>O의 반응성이 작아 미반응 Li<sub>2</sub>O가 금속전환체에 잔류하여 전해정련공정으로 이동하게 된다.

## 2.2 전해정련공정에서의 UCl<sub>3</sub> 농도조절

전해정련공정은 전해환원공정에서 생성된 금속전환체로부터 500℃의 LiCl-KCl 공융염에서 순수한 우라늄을 고체전극을 이용한 전기화학적인 방법으로 선택적으로 회수하는 공정이다. 금속전환체를 양극으로 고체전극을 음극으로 적용하여 전류를 인가하면 열역학적 특성에 의해 UCl<sub>3</sub> 보다 염화물로 더 안정한 TRU 및 RE 원소는 염화물의 형태로 공융염에 용해되지만 귀금속과 전이금속들은 UCl<sub>3</sub>와 반응하여 용해되지 않고 양극바스켓에 잔류하게 된다. 이 때 표준 전위가 가장 큰 우라늄이 고체음극에 전착됨으로써 순수한

우라늄을 회수할 수 있다. 전해정련공정이 진행됨에 따라 우라늄은 음극에 전착되어 회수되지만 공융염 중에는 TRU 및 RE 원소가 축적되어 그 농도가 증가하게 되며 어느 시점에서 TRU 원소들도 고체음극에 전착하게 된다. 그러나 용융염 내 UCl<sub>3</sub>의 농도가 일정농도 이상으로 유지되는 조건에서는 TRU 원소들이 아래와 같은 반응식에 의해 전착된 TRU 원소가 염화물의 형태로 변화하므로 순수한 우라늄만을 회수할 수 있게 된다[11].



따라서, 순수한 우라늄만을 회수하기 위해서는 공융염 내의 UCl<sub>3</sub> 농도를 일정 농도 이상 유지하여야 한다. 실제 전해정련 운전에서는 UCl<sub>3</sub> 농도의 하한 값을 설정하고 이 값에 도달하면 UCl<sub>3</sub>를 추가로 투입하여 전해조의 UCl<sub>3</sub> 농도를 초기농도까지 증가시킨 후, 우라늄 회수 운전을 수행하는 과정을 반복하여 운전한다. 따라서, LiCl-KCl 공융염 중의 UCl<sub>3</sub> 농도 조절은 전해정련공정 운전의 가장 중요한 운전변수이다.

## 3. 전해정련 전해조의 농도변화

### 3.1 UCl<sub>3</sub> 농도 예측을 위한 공정 기본 설계

한국원자력연구원에서는 파이로프로세싱 기술개발을 위하여 사용후핵연료의 기준을 설정하여 연구를 수행하고 있다. 본 연구에서 고려한 사용후핵연료는 4.5 wt% <sup>235</sup>U의 핵연료에 대해 연소도는 55,000 MWD/MTU 이며 10년 냉각된 산화물핵연료 10 MTU를 기준으로 하였다. 이 때, 처리될 사용후핵연료의 주요 핵종 그룹의 함량은 Table 1과 같다. 여기서 고려된 TRU는 Pu, Am, Np 및 Cm이며, RE 원소는 Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb 및 Dy이다. 파이로프로세싱 기술은 연속식 공정이 아니라 회분식(batch) 공정이다. 따라서, 실험실 규모의 실험으로부터 공학규모로 용량을 증대하였을 때에도 각 전해조의 성능을 유지할 수 있도록 용량을 scale-up 하여야 한다. 현재까지 기술개발을 통하여 성능이 입증된 용량은 50 kg/batch 이다[12]. 따라서 본 연구에서 고려한 전해조 용량도 50 kg/batch를 기준으로 하였으며,

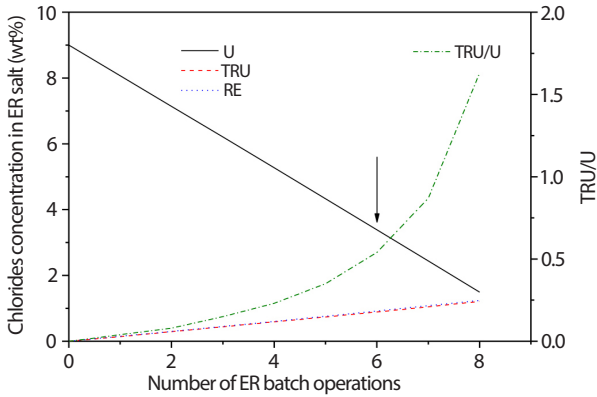


Fig. 1. The concentration changes of chlorides in LiCl-KCl molten salts by electrorefining operation.

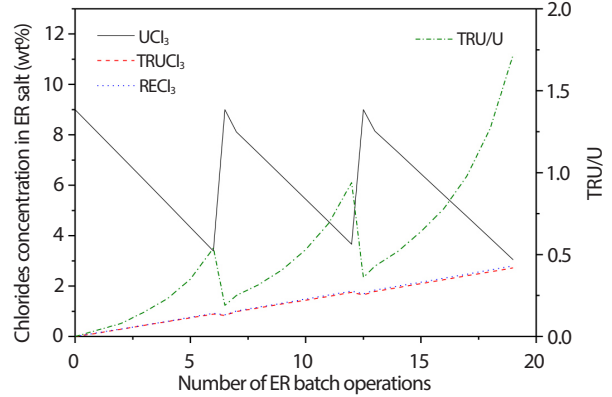
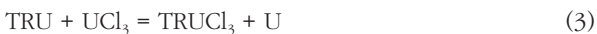


Fig. 2. The concentration changes of chlorides in LiCl-KCl molten salts by additional injection of UCl<sub>3</sub>.

전해조의 용융염은 300 kg로 설정하였다.

전해정련 공정의 운전은 50 kg/batch 장치에서 20 batch 운전을 1 campaign으로 설정한 운전모드에 따라 운전된다. 초기 반응 시작 전에 UCl<sub>3</sub> 농도를 9 wt%로 설정하여 운전을 시작하며, 최소 UCl<sub>3</sub> 농도를 3 wt% 이상으로 유지하도록 UCl<sub>3</sub>를 추가로 투입하면서 운전한다[13]. 따라서, 1 campaign 운전동안에도 2~3회 UCl<sub>3</sub>를 추가하게 된다. UCl<sub>3</sub>의 추가 주입은 전해환원공정에서 공급되는 금속전환체의 TRU 원소와 RE 원소가 염화물 형태로 용융염 중으로 용해되며 이에 따라 UCl<sub>3</sub> 농도가 감소하는 것이다. 환원공정에서 TRU 원소는 99% 이상 환원되지만, RE 원소의 환원도는 U/TRU에 비해 낮은 것으로 알려져 있다. 그러나, 미 환원된 RE 원소도 UCl<sub>3</sub>와의 반응성이 커서 전해정련 전해조로 용해되는 것으로 알려져 있다. 또한, 환원공정의 증류공정에서 제거되지 못하고 금속전환체에 동반되어 전해정련공정으로 이송된 Li<sub>2</sub>O의 농도에 따라서도 UCl<sub>3</sub>의 농도가 감소하게 된다. 즉 금속전환체에 함유되어 동반된 TRU 원소와 RE 원소 및 Li<sub>2</sub>O는 반응식 (3), (4) 및 (5)에 따라 UCl<sub>3</sub>와 반응한다. Li<sub>2</sub>O와 UCl<sub>3</sub> 반응(4)의 경우 우라늄 산화물(UO, UO<sub>2</sub>)가 생성되어 양극 바스켓에 잔류할 수 있다. 이러한 양극 바스켓 잔류 우라늄 산화물은 전해정련 전해조에서 처리되지 못하고 환원공정으로 되돌아가거나 양극 바스켓 잔류물 처리공정에서 처리되어야 하므로, 그 양에 따라 공정 운전이 부담으로 작용할 수 있다.



(Pu,  $\Delta G = -22$  kcal at 500°C, 평형상수  $K = 2.2 \times 10^6$ )



(Nd,  $\Delta G = -38$  kcal at 500°C, 평형상수  $K = 5.5 \times 10^{10}$ )



( $\Delta G = -148$  kcal at 500°C, 평형상수  $K = 6.9 \times 10^{41}$ )

환원공정에서는 Li<sub>2</sub>O의 농도를 기본적으로 1 wt%로 유지하여 반응을 시작하며 환원반응을 위한 환원체 내부에서의 Li<sub>2</sub>O의 농도는 운전조건에 따라 변화하는 것으로 알려져 있다. 증류공정을 위한 금속전환체에는 약 10% 정도의 염이 동반되며 Li<sub>2</sub>O도 염과 함께 동반되어 증류공정을 거치게 되지만 LiCl염과 달리 쉽게 제거되지 않고 염에 잔류하거나 금속전환체와 반응하여 재산화 반응을 일으킨다. LiCl 염을 제거하기 위한 증류공정에서 금속전환체에 동반되는 염 10 wt%를 기준으로 Li<sub>2</sub>O 농도는 1 ~ 10 wt%까지 변화한다는 가정 하에 전해정련 염의 UCl<sub>3</sub> 농도 변화를 계산하였다.

금속전환체 중의 각 핵종과 UCl<sub>3</sub>의 반응특성에 대한 시뮬레이션을 위해서는 상기 반응식 (3), (4) 및 (5)의 평형상수, 금속전환체 각 핵종의 환원도 및 고체 액체에서의 확산계수 등 고려할 여러 가지 인자들이 필요로 한다. 그러나 이러한 정확한 물질 및 반응 특성 자료들은 모두 찾기가 쉽지 않으며, 모든 인자들을 고려한 시뮬레이션 자체도 이론적 유도일 뿐 실제 운전 특성과는 거리가 있다. HSC Chemistry code를 이용한 계산 결과 금속전환체 내의 동반 원소와 UCl<sub>3</sub>의 반응에 대한 평형상수 값은 매우 큰 값을 가지므로 본 연구에서는 TRU 및 RE 원소와 Li<sub>2</sub>O가 UCl<sub>3</sub>와 비가역적으로 완전히

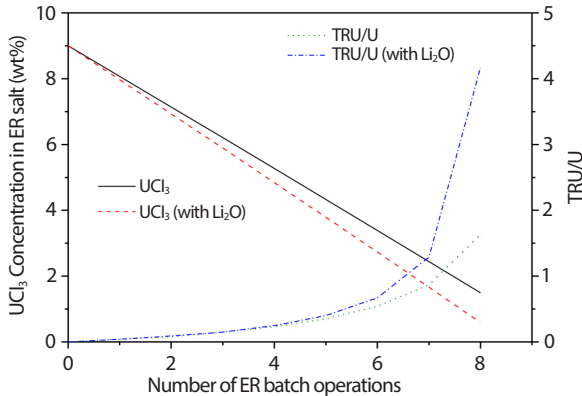


Fig. 3. The concentration changes of chlorides in LiCl-KCl salts at 500°C by 1 wt% of the residual  $Li_2O$ .

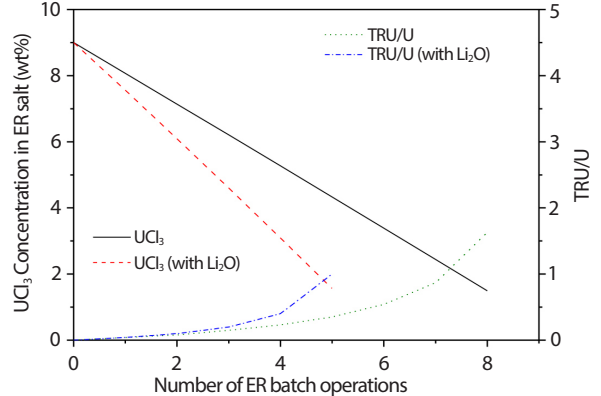


Fig. 4. The concentration changes of chlorides in LiCl-KCl salts at 500°C by 5 wt% of the residual  $Li_2O$ .

반응하여 용해되는 것으로 가정하였으며, 각 원소의 염화물의 농도와 소모되는  $UCl_3$ 의 양은 각각의 반응식에 따른 양론비에 근거하여 계산되었다. 따라서 그 계산 결과는 실제 운전 결과보다 보수적일 것으로 예상할 수 있으며, 본 연구의 결과는 실제 전해정련공정 운전에서 참고 기준자료로서 활용가치가 충분하다고 판단된다.

### 3.2 전해정련 운전에서 따른 $UCl_3$ 농도변화

전해정련 운전에서 따른 전해조 용융염 중의 염화물 원소 농도 변화를 Fig. 1에 나타내었다. 초기  $UCl_3$  농도 9 wt%에서 시작하여 batch 운전이 진행됨에 따라  $UCl_3$  농도가 감소하고 있으며, 금속전환체에 포함된 TRU 원소와 RE 원소도 염화물의 상태로 용융염 중에 용해되어 batch 운전에서 따라 농도가 증가하고 있다. 전해정련 운전에서 따른 우라늄 제거와 TRU 원소의 축적에 따라 용융염 중 TRU/U도 증가하였다. 그러나 순수한 우라늄을 회수하기 위한 전해정련 운전 방법에 따르면 용융염 중  $UCl_3$  농도를 3 wt% 이상 유지하도록 하고 있으며, 계산 결과는 6 batch 운전이면 약 3.4 wt%에 도달하여 7번째 batch 운전을 하지 못한다. 따라서 추가로  $UCl_3$ 를 주입하여  $UCl_3$  농도를 증가시킨 후 운전을 수행하여야 한다. 1 campaign(20 batch) 전해정련 운전의 경우, 최소  $UCl_3$  농도 3 wt%를 유지하며  $UCl_3$ 의 초기농도를 9 wt%로 맞추어 추가하면서 운전하였을 때 용융염 중 염화물의 농도를 Fig. 2에 나타내었다. 사용후핵연료의 전해정련 처리에 따라 TRU 원소와 RE 원소가 계속 축적되었으며,  $UCl_3$  추가 투입

시  $UCl_3$ 의 농도가 증가하여 TRU/U의 비가 일시적으로 감소하였으나, TRU 원소의 지속적인 축적에 따라 1 campaign 운전에서 따른 TRU/U의 비는 계속 증가하였다. 용융염의  $UCl_3$  농도를 3 wt% 이상으로 유지하기 위해서는 첫 번째와 두 번째 단계에서는 6 batch, 세 번째 단계에서는 7 batch 만을 운전할 수 있음을 보여 주었다.

### 3.3 $Li_2O$ 유입에 따른 전해정련 전해조의 $UCl_3$ 농도 변화

전해정련 전해조의 TRU와 RE 원소의 축적과 함께 금속전환체에 동반되어 전해정련 전해조에 유입되는  $Li_2O$ 의 영향을 검토하였다. 금속전환체에 함유된 염 중 1 wt%가 잔류하여 전해정련 공정에 동반되었을 경우 전해정련 전해조 용융염 중  $UCl_3$  농도의 변화를  $Li_2O$  유입이 없을 경우와 비교하여 Fig. 3에 나타내었다. 또한 용융염 중 TRU/U 비의 변화도 비교하여 함께 나타내었다.  $Li_2O$  영향이 없을 경우  $UCl_3$  농도를 3 wt% 이상 유지하기 위해서는 6 batch까지 운전이 가능하였으나,  $Li_2O$  1 wt%가 유입되면 5 batch까지만 운전할 수 있는 것으로 나타났다. 즉,  $Li_2O$ 와  $UCl_3$ 의 반응에 따라  $UCl_3$ 가 추가로 소모됨으로써  $UCl_3$  농도 감소가 더 크게 나타난다. 또한  $UCl_3$ 의 급격한 소모에 따라 용융염 중 TRU/U의 비도 운전 batch 수 증가에 따라 커지는 것으로 나타났다. 전해정련 공정의 운전에서 TRU/U의 비가 커지면 회수되는 우라늄에 TRU 원소가 오염될 가능성이 커지게 되므로, 이 또한 운전 제한 변수로 작용할 수 있다.  $Li_2O$ 가 5 wt%까지

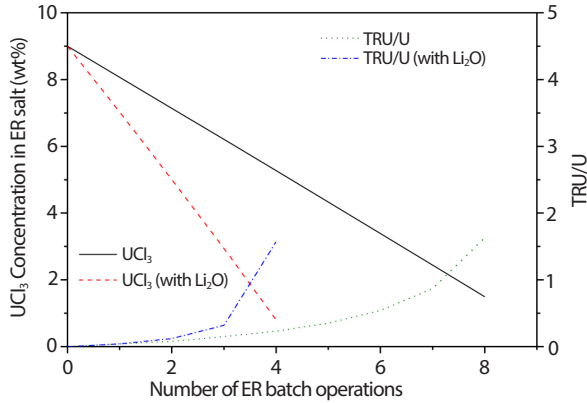


Fig. 5. The concentration changes of chlorides in LiCl-KCl salts at 500°C by 10 wt% of the residual  $Li_2O$ .

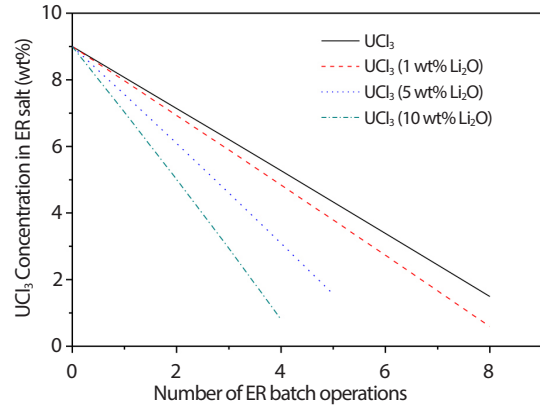


Fig. 6. The concentration changes of chlorides in LiCl-KCl salts by the residual  $Li_2O$ .

동반될 때의 용융염 중 농도변화를 Fig. 4에  $Li_2O$ 가 10 wt%까지 유입될 경우를 Fig. 5에 각각 나타내었다. 5 wt% 경우에는 최대 5 batch까지, 10 wt%의 경우는 최대 4 batch까지 운전할 수 있으나,  $UCl_3$ 의 운전 최소농도 3 wt%를 고려하면 5 wt%의 경우 4 batch까지, 10 wt%의 경우에는 3 batch까지만 운전할 수 있는 것으로 계산되었다. 즉, 금속전환체에 동반되는  $Li_2O$  농도의 증가에 따라  $UCl_3$ 의 농도도 급격히 감소함을 보여 주었다. 각각의  $Li_2O$  유입 농도에 따른 전해정련 용융염 중  $UCl_3$ 의 농도 변화를  $Li_2O$  유입이 없는 경우와 비교하여 Fig. 6에 나타내었다.  $Li_2O$  유입 농도가 증가함에 따라 용융염 중  $UCl_3$ 의 농도가 감소하며, 운전 가능한 batch 수도 감소함을 알 수 있었다. 따라서 이러한 결과는 전해정련 운전 중 용융염의  $UCl_3$  농도 유지를 위해 TRU 원소와 RE 원소의 용해뿐 아니라 금속전환체에 동반되어 유입될 가능성이 있는  $Li_2O$ 의 영향이 매우 크며, 이를 고려하여 운전모드를 결정해야 함을 보여준다.

#### 4. 결론

본 연구에서는 파이로프로세싱의 전해환원공정에서 생산된 금속전환체의 조성 조건이 전해정련공정의 용융염 중  $UCl_3$ 의 농도변화에 미치는 영향을 평가하였다. 전해정련 공정 운전 시에 사용후핵연료에 함유된 TRU와 RE 원소는  $UCl_3$ 와 반응하여 염화물의 형태로 용융염에 축적되며 이에

따라  $UCl_3$ 의 농도가 계속 감소하게 된다. 한편 환원공정에서 첨가된  $Li_2O$ 는 염 제거를 위한 증류공정에서 금속전환체의 재산화를 일으키거나 증류공정에서 제거되지 않고 금속전환체와 함께 동반되어 전해정련 공정으로 이동될 수 있으며 금속전환체에 동반된  $Li_2O$ 는 전해정련공정 전해조의  $UCl_3$ 와 반응하여 우라늄 산화물을 생성함으로써 전해조의  $UCl_3$  농도를 낮추게 된다. 전해조의  $UCl_3$ 의 농도가 낮아지면 회수하는 우라늄에 TRU 또는 RE 원소가 불순물로 동반될 수 있으므로 일정농도 이상의  $UCl_3$  농도를 유지하기 위하여 일정 batch의 운전 후  $UCl_3$ 를 보충해 주어야 한다.

전해정련 운전의 운전 batch 수 증가에 따라  $UCl_3$  농도가 감소하였으며, 전해조의 최소  $UCl_3$  농도 3 wt%를 유지하기 위해서는 약 6 batch 운전 후에  $UCl_3$  추가해야 하는 것으로 계산되었다. 전해정련 1 campaign(20 batch)를 운전하기 위해서는 이러한  $UCl_3$  보충이 3회 이상 수행되어야 함을 알 수 있었다. 한편, 금속전환체에 동반되어 전해정련 전해조에 유입되는  $Li_2O$ 의 영향을 검토한 결과  $Li_2O$  잔류량에 따라  $UCl_3$  농도 변화가 크게 일어나며 운전 가능 batch 수가 급격히 감소함을 알 수 있었다. 이러한 결과는 전해정련 운전 중 용융염의  $UCl_3$  농도 유지를 위해 TRU 원소와 RE 원소의 용해뿐 아니라 금속전환체에 동반되어 유입될 가능성이 있는  $Li_2O$ 의 영향도 고려하여 운전모드를 결정해야 함을 보여주었다. 따라서 본 연구에서 기술한 전해환원 생산물인 금속전환체의 조건(특히  $Li_2O$  농도)에 따른 전해정련 전해조의  $UCl_3$  농도변화, TRU 농도 및 RE 농도의 축적에 대한 평가 결과는

전해정련 운전의 효율향상에 크게 기여할 것으로 기대된다.

## 감사의 글

This work was supported by a National Research Foundation of Korea grant funded by the Korean Ministry of Science, ICT and Future Planning [grant number 2017M2A8A5015079].

## REFERENCES

- [1] K.C. Song, H. Lee, J.M. Hur, J.G. Kim, D.H. Ahn, and Y.Z. Cho, "Status of pyroprocessing development in Korea", *Nucl. Eng. Technol.*, 42(2), 131-144 (2010).
- [2] H. Lee, G.I. Park, K.H. Kang, J.M. Hur, J.G. Kim, D.H. Ahn, Y.Z. Cho, and E.H. Kim, "Pyroprocessing technology development at KAERI", *Nucl. Eng. Technol.*, 43(4), 317-328 (2011).
- [3] J.W. Lee, H. Lee, E.H. Kim, J.H. Lee, D. Vaden, B. Westphal, and M.F. Simpson, "Assessment of a U Product Purity from Pyroprocessing Spent EBR-II Fuel", *J. Korean Radioactive Waste Soc.*, 7(3), 167-174 (2009).
- [4] E.Y. Choi, M.K. Jeon, and J.M. Hur, "Reoxidation of uranium in electrolytically reduced simulated oxide fuel during residual salt distillation", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 314(1), 207-213 (2017).
- [5] E.Y. Choi, M.K. Jeon, J. Lee, S.W. Kim, S.K. Lee, S.J. Lee, D.H. Heo, H.W. Kang, S.C. Jeon, and J.M. Hur, "Reoxidation of uranium metal immersed in a  $Li_2O-LiCl$  molten salt after electrolytic reduction of uranium oxide", *J. Nucl. Mater.*, 485, 90-97 (2017).
- [6] M.K. Jeon, T.S. Yoo, E.Y. Choi, and J.M. Hur, "Quantitative calculations on the reoxidation behavior of oxide reduction system for pyroprocessing", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 313(1), 155-159 (2017).
- [7] I.S. Kim, D.Y. Chung, M.S. Park, J.M. Hur, and J.K. Moon, "Evaporation of  $CsCl$ ,  $BaCl_2$ , and  $SrCl_2$  from the  $LiCl-Li_2O$  molten salt of the electrolytic reduction process", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 303(1), 223-227 (2015).
- [8] I.S. Kim, S.C. Oh, H.S. Im, J.M. Hur, and H. Lee, "Distillation of  $LiCl$  from the  $LiCl-Li_2O$  molten salt of the electrolytic reduction process", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 295(2), 1413-1417 (2013).
- [9] E.Y. Choi, C.Y. Won, D.S. Kang, S.W. Kim, J.S. Cha, S.J. Lee, W. Park, H.S. Im, and J.M. Hur, "Production of uranium metal via electrolytic reduction of uranium oxide in molten  $LiCl$  and salt distillation", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 304(2), 535-546 (2015).
- [10] H.W. Kang, E.Y. Choi, S.W. Kim, S.S. Hong, M.K. Jeon, S.K. Lee, S.C. Oh, W. Park, and J.M. Hur, "Distillation characteristics of  $LiCl-Li_2O$  electrolyte for  $UO_2$  electrolytic reduction process", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 310(3), 1165-1171 (2015).
- [11] J.J. Laidler, J.E. Battles, W.E. Miller, J.P. Ackerman, and E.L. Carls, "Development of pyroprocessing technology", *Progress. Nucl. Energy*, 31(1), 131-140 (1997).
- [12] H. Lee, G.I. Park, J.W. Lee, K.H. Kang, J.M. Hur, J.G. Kim, S. Paek, I.T. Kim, and I.J. Cho, "Current status of pyroprocessing development at KAERI", *Sci. Technol. Nucl. Install.*, 2013, 1-11 (2013).
- [13] S. Park, S.C. Hwang, S. J. Lee, and H. Lee, "Assessment of lab-scale high-throughput electro-refiner with respect to the anode surface area and  $UCl_3$  concentration in  $LiCl-KCl$  eutectic salt", *Global 2015*, September 22, 2015, Paris, France.