

용융염이 포함된 우라늄 전착물의 염회발 및 잉곳 제조 특성

박성빈, 조동욱, 오규환, 이종현, 이윤상, 황성찬, 강영호, 이한수, 김응호

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

sbpark@kaeri.re.kr

1. 서론

최근 원자력에너지의 필요성과 사용후핵연료의 발생량이 증가함에 따라 GEN-IV 및 GNEP 등을 통해 사용후핵연료의 폐기물의 양에 대한 절감 및 에너지 효율 극대화에 관심을 기울이게 되었고 이에 대한 정책 및 연구가 활발하게 진행되고 있다. 고온건식공정(Pyroprocess)는 사용후핵연료를 처리하는 대안으로 주목을 받고 있는 공정이다. 고온건식공정 중 전해정련(electrorefining) 공정은 용융염을 매질로 사용하여 환원전위에 따라 핵분열생성물로부터 순수한 우라늄을 분리 회수하는 중요한 공정이다. 전해정련공정을 거치면서 우라늄이 고체전극에 전해전착 되어지는데, 고체전극에 전착된 우라늄 석출물은 약 30~40 wt%의 용융염을 포함하고 있다. 이 석출물로부터 순수한 우라늄을 회수하고 금속 잉곳으로 제조하기 위해서는 용융염을 제거해야 한다. 특히, 용융염 속에 PuCl_3 이 잔존하게 되면 고온에서 우라늄 잉곳 제조시 PuCl_3 가 금속 우라늄과 반응을 하여 Pu 으로 환원될 수 있기 때문에 저온에서 용융염을 제거해야 할 필요가 있다. 따라서 전해석출된 우라늄을 원하는 일정한 형태의 잉곳으로 제조하기 전에 염회발공정을 도입할 수 있다. 이번 연구에서는 우라늄 석출물에 대해 진공압과 유지온도변화에 따라 Hertz-Langmuir 관계식을 적용하여 용융염의 회발 특성을 고찰하고자 하며 우라늄 잉곳을 제조하는 특성을 알아보하고자 한다.

2. 실험 및 결과

염회발장치는 증류관, 가열시스템, Ar 분위기제어시스템, 진공펌프, 회발된 염을 포집하는 응축 시스템으로 구성되어 있다. 용융염을 포함하고 있는 일정량의 우라늄 석출물을 염회발장치에 장입하여 가열과 진공 회발을 통한 회분식 조업으로 염회발 과정을 수행하게 된다. 용융염의 회발 특성은 주로 용융염의 각 구성성분의 증기압과 온도에 크게 의존한다. Fig.1(a)는 진공압 변화에 따른 우라늄 석출물의 염의 회발 특성을 나타낸다. 진공압이 낮아지면서 회발이 더 잘 일어남을 확인할 수 있었다. 이 실험결과에 대해 진공회발에 관련된 관계식인 Hertz-Langmuir을 적용하여 염회발거동을 고찰할 수 있었다.

$$M = \frac{\alpha P_i}{\sqrt{2\pi m RT}}$$

여기서 α 는 0~1의 값을 가지는 회발계수를 나타내며 최대 회발량에 대한 실제 회발량의 비를 나타낸다. 실험결과로부터 회발계수의 값을 구할 수 있었으며 이를 Table 1에 정리하였다. 진공압이 낮아지면서 회발계수가 커졌으며 이는 실험결과와 일치하는 경향임을 확인할 수 있었다. 또한 유지온도를 변화시키면서 우라늄 석출물의 염회발 실험을 수행하였다. 그 실험결과를 Fig.1(b)에 나타내었다. 유지온도가 낮아지면서 염회발이 잘 일어나지 않음을 확인할 수 있었다. 한편 700 °C 유지온도에서의 염회발거동을 살펴보면 LiCl-KCl 용융염의 증기압온도보다 낮은 온도하에서도 염회발은 진행이 되나 잔류염이 많음을 확인할 수 있었다. 더 많은 염을 회발시키기 위해서는 유지시간을 더 길게 해야 하지만 조업시간이 길어지는 단점을 고려해야 할 것이다. 한편 유지온도 변화에 대한 회발계수는 유지온도가 낮아짐에 따라 Table 2와 같이 회발계수가 감소함을 확인할 수 있었다. 유지온도가 700 °C인 경우 회발계수가 높게 나왔는데 이에 검토가 필요하다.

Fig.2는 우라늄 석출물의 염증류 및 잉곳을 제조하는 특성을 알아보기 위해 상온에서 1300 °C까지 승온시킨 후 1300 °C에서 2시간 유지한 실험결과이다. Fig.2(a)는 1300 °C까지 선형적으로 승온시킨 결과이며 Fig.2(b)는 1000 °C에서 2시간 유지하여 2단계 승온시켜 잉곳제조를 수행한 결과를 나타낸다. 실험장치의 밀폐성 문제로 약 50%의 우라늄만 잉곳으로 제조되었으며 나머지는 산화되었을 뿐 아니라 염회발시 튜현상으로 인해 도가니 외벽에 비산되어 있음을 확인할 수 있었다. 따라서

장치의 보완으로 우라늄석출물의 산화를 방지하며 비산을 최소화하는 연구가 수행되어야 할 것이다.

3. 결론

전해정련공정으로부터 나온 우라늄 석출물로부터 순수한 우라늄을 얻기 위해 용융염을 제거하기 염취발공정을 도입하게 되었다. 염취발특성을 알아보기 위해 진공압 및 유지온도 변화에 따른 염취발 실험을 수행하였고 Hertz-Langmuir 관계식을 적용하여 휘발계수를 얻을 수 있었다. 진공압이 낮아질수록, 유지온도가 높아질수록 염취발 효율이 커짐을 확인하였다. 우라늄석출물로부터 우라늄 잉곳을 제조하기 위해 선형적 승온법과 2단계 증류법을 적용하여 우라늄 잉곳제조 특성을 알아보았다.

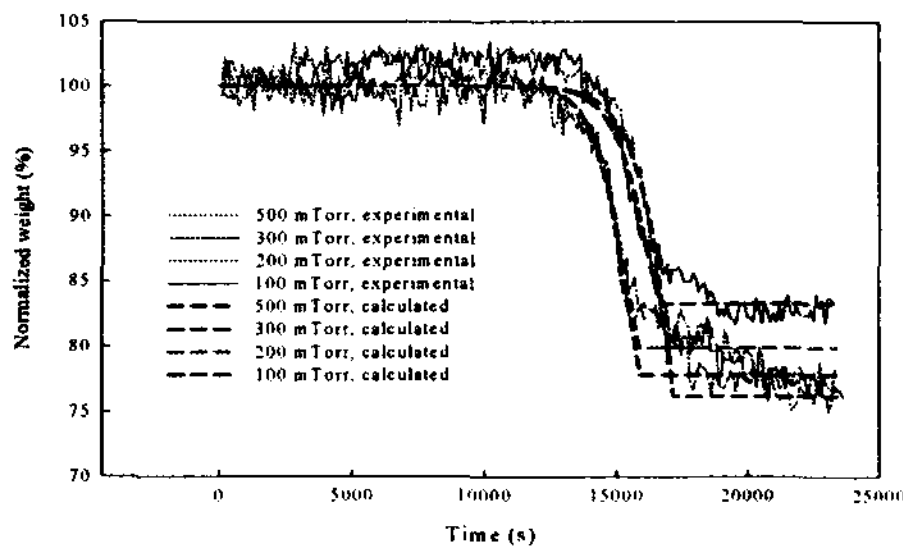


Fig. Effect of vacuum pressure on the salt evaporation.

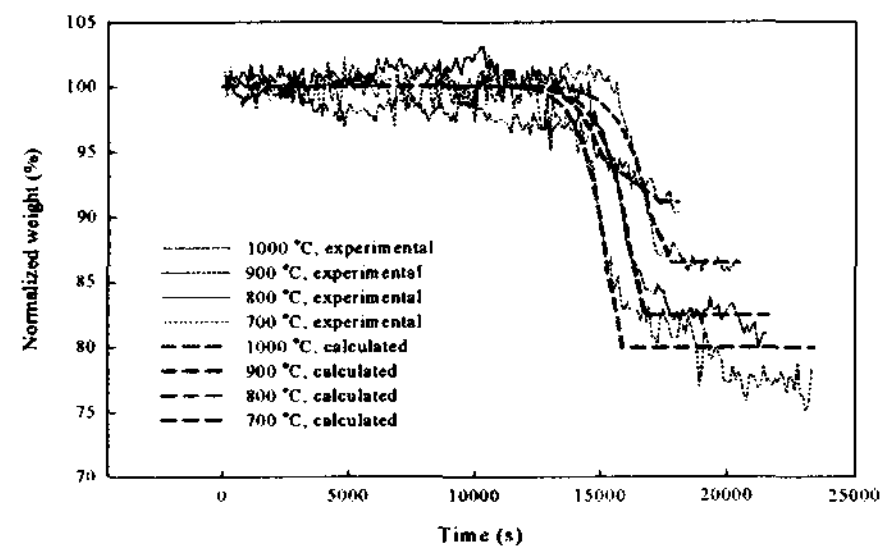


Fig. Effect of temperature on the salt evaporation at 200 mTorr.

(a) Vacuum pressures upto 1000 °C heating

(b) Holding temperatures at 200 mTorr

Fig.1. Effects of the vacuum pressures and the 1 hour holding temperatures on the salt evaporation.

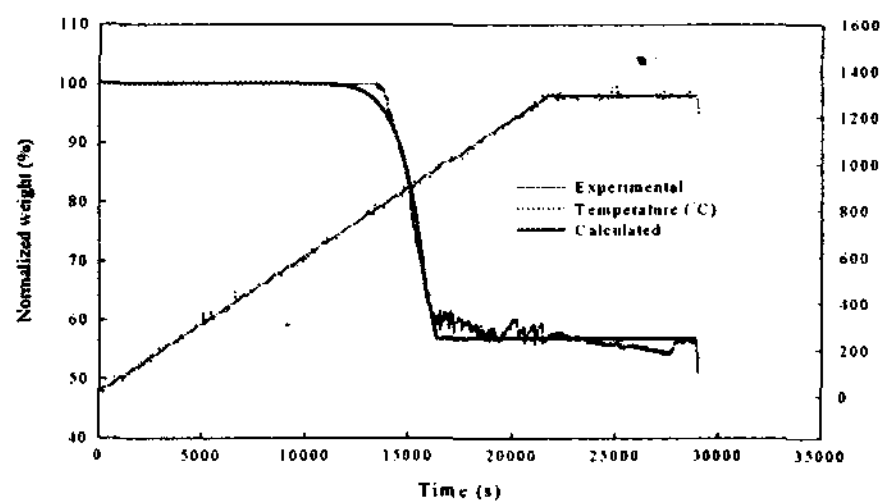


Fig. Salt distillation & U ingot manufacturing from U deposit. 2007/06/20, alumina crucible, 200 mTorr, 1300 °C (3-4 °C/min) 2 h.

(a) Direct heating

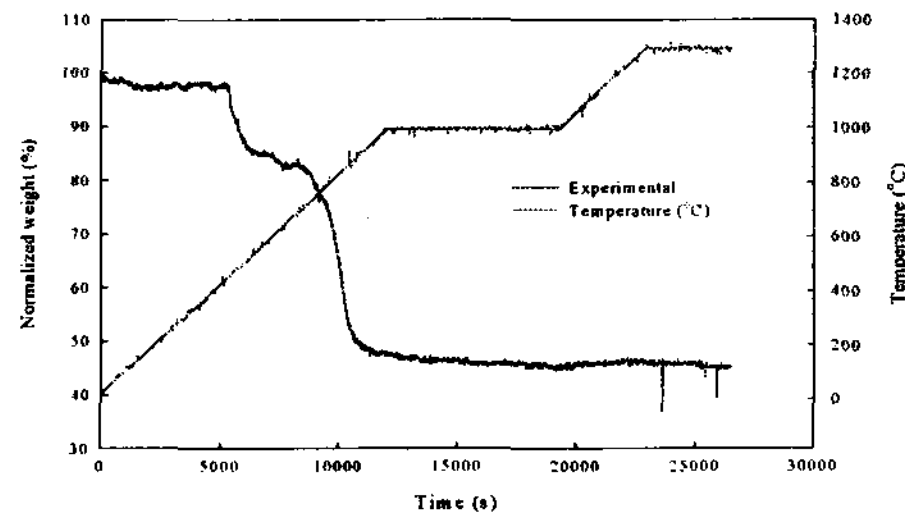


Fig. Salt distillation & U ingot manufacturing from U deposit. 2007/06/28, graphite crucible, 200 mTorr, 1000 °C 2h - 1300 °C 1h (5 °C/min).

(b) Stepwise heating

Fig.2. Salt distillation and U ingot manufacturing from U deposit upto 1300°C at 200 mTorr.

Table 1. Comparison of the evaporation coefficients with respects to the vacuum pressures.

Vacuum Pressure (mTorr)	Evaporation coefficient (a)
500	3.040×10^{-5}
300	4.656×10^{-5}
200	1.251×10^{-4}
100	1.779×10^{-4}

Table 2. Comparison of the evaporation coefficients with respects to the 1 hour holding temperatures.

Holding Temperature (°C)	Evaporation coefficient (a)
1000	1.251×10^{-4}
900	5.619×10^{-5}
800	4.630×10^{-5}
700	1.661×10^{-4}