

우라늄 전착물의 염증류 거동에 대한 예측

박성빈, 조동욱, 오규환, 이종현, 이윤상, 황성찬, 강영호, 이한수, 김용호
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 sbpark@kaeri.re.kr

1. 서론

고온건식공정(Pyroprocess)는 사용후핵연료를 처리하는 대안으로 주목을 받고 있는 공정이다. 고온건식공정 중 전해정련(electrorefining)공정은 용융염을 매질로 사용하여 핵분열생성물로부터 순수한 우라늄을 전기화학적으로 회수하는 중요한 공정이다. 전해정련공정을 거치면서 우라늄이 고체전극에 전착되는데, 고체전극에 전착된 우라늄 석출물은 약 30~40 wt%의 용융염을 포함하고 있다. 이 석출물로부터 순수한 우라늄을 회수하여 금속 잉곳으로 용이하게 제조하기 위해서는 용융염을 먼저 제거하는 것이 유리하다. 이번 연구에서는 우라늄 석출물의 염증류에 대한 진공압과 유지온도의 영향을 고찰하였으며 Hertz-Langmuir 관계식을 적용하여 각 용융염의 휘발 조건에 대해 염휘발계수를 얻을 수 있었다. 이를 통해 Hertz-Langmuir 관계식을 이용하여 U 전착물의 염증류 거동에 대해 예측가능함을 확인 할 수 있었으며 99% 이상의 염제거율을 나타내는 염증류 공정의 최적 조업조건을 도출하고자 하였다.

2. 실험 및 결과

염휘발장치는 증류관, 가열시스템, Ar 분위기제어시스템, 진공펌프, 휘발된 염을 포집하는 응축 시스템으로 구성되어 있다. 용융염을 포함하고 있는 일정량의 우라늄 석출물을 염휘발장치에 장입하여 가열과 진공 휘발을 통한 회분식 조업으로 염휘발 과정을 수행하게 된다. 용융염의 휘발 특성은 주로 용융염의 각 구성성분의 증기압과 온도에 크게 의존한다. 우라늄 전착물에 포함된 염은 LiCl, KCl 그리고 UCl_3 로 이루어져 있으며 이들의 증기압은 우라늄 금속보다 훨씬 높으므로 증류 공정을 통해 분리가능함을 알 수 있다. 이번 연구에서는 진공압을 100, 200, 300 그리고 500 mTorr으로, 유지온도를 700, 800, 900 그리고 1000°C로 변화시키면서 우라늄석출물에 대한 염증류 실험을 수행하였다. 이 때 각 유지온도에서 각각 1시간동안 유지하였다. 각 진공압과 유지온도 조건에서 염제거율을 측정할 수 있었으며 그 결과는 Table 1과 같다.

Table 1. Salt removal efficiencies with respects to the vacuum pressures and the hold temperatures with 1 hour hold time.

T(°C) \ P(mTorr)	700	800	900	1000
100	44.61	81.48	99.27	99.74
200	30.00	77.75	93.98	98.55
300	17.51	76.56	87.55	98.93
500	10.65	64.93	78.94	90.01

진공압이 클수록, 유지온도가 높을수록 염제거율이 증가함을 확인할 수 있었다. 우라늄 전착물에 포함된 염의 99%를 제거하기 위해서는 1시간 유지시간의 조건에서 100 mTorr 이하 그리고 900°C 이상이어야 함을 알 수 있다. 한편 진공휘발에 관련된 관계식인 Hertz-Langmuir을 적용하여 염휘발거동을 고찰할 수 있다.

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

여기서 α 는 0~1의 값을 가지는 휘발계수를 나타내며 최대 휘발량에 대한 실제 휘발량의 비를 나타낸다. 각 실험조건에 대한 염증류 결과로부터 휘발계수의 값을 구할 수 있었으며 이를 Table 2에 나타하였다.

Table 2. The fitted evaporation coefficients with respects to the vacuum pressures and the hold temperatures with 1 hour hold time.

T(°C) \ P(mTorr)	700	800	900	1000
100	1.019x10 ⁻³	6.903x10 ⁻⁴	1.134x10 ⁻³	1.386x10 ⁻³
200	2.833x10 ⁻⁴	5.936x10 ⁻⁴	6.710x10 ⁻⁴	7.886x10 ⁻⁴
300	3.014x10 ⁻⁴	2.933x10 ⁻⁴	4.661x10 ⁻⁴	6.690x10 ⁻⁴
500	2.020x10 ⁻⁴	2.035x10 ⁻⁴	2.315x10 ⁻⁴	4.288x10 ⁻⁴

실험결과로부터 모사된 휘발계수를 다음과 같은 진공압과 유지온도에 따른 상관관계식으로 모사할 수 있었다.

$$\alpha = a + b\frac{T}{P} + c\left(\frac{T}{P}\right)^2 + d\left(\frac{T}{P}\right)^3$$

Fig.1은 실험결과로부터 구한 휘발계수와 위 상관관계식으로 상관된 휘발계수를 비교한 결과이며 잘 일치함을 알 수 있었다. 이로부터 상관된 휘발계수를 이용하여 다른 진공압과 유지온도에서의 증발속도를 구할 수 있으므로 각 염증류 조업조건에 대한 염휘발 거동을 예측할 수 있다. 한편, 우라늄 전착물에 대한 염증류 공정에 대해 제한조건을 고려할 수 있다. 염증류장치를 스테인레스강으로 사용할 경우 우라늄은 Fe, Ni 그리고 Cr 등과 공정(eutectic melt)을 형성할 수 있다. U-Fe, U-Ni 그리고 U-Cr에 대한 공정은온도는 각각 725, 740 그리고 734°C이다. 따라서 우라늄금속이 스테인레스강과 반응하여 공정을 형성하지 않도록 하기 위해서는 염증류공정의 조업온도를 720°C이하로 유지해야 한다. 720°C이하에서 염증류를 수행하기 위해서는 염의 증기압 데이터로부터 약 60 mTorr 이하의 압력으로 염증류를 수행해야 함을 알 수 있었다. Hertz-Langmuir 관계식을 우라늄 전착물의 염증류 공정에 적용하여 700°C에서 50 mTorr의 압력일 때 99% 염제거율을 달성하기 위해서는 약 4.6 시간이 걸림을 예측할 수 있었다.

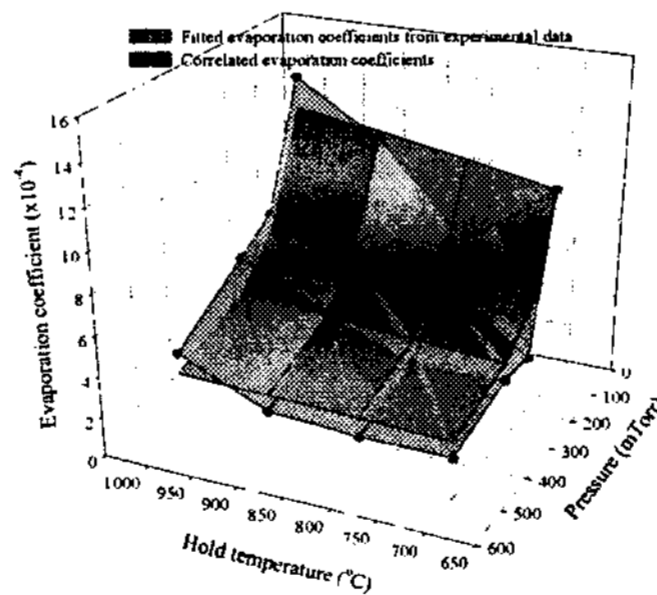


Fig.1. Comparison of evaporation coefficients with respect to the vacuum pressures and the hold temperatures.

3. 결론

본 연구에서는 우라늄 전착물의 염증류에 대한 진공압 및 유지온도의 영향을 고찰하여 보았으며 Hertz-Langmuir 관계식을 적용하여 염휘발계수를 얻었다. 진공압 및 유지온도의 함수인 염휘발계수의 상관관계식으로부터 각 조업조건에 대한 염휘발 거동을 예측할 수 있었다. 이로부터 우라늄 전착물의 염증류 공정에 대한 제한조건으로부터 99% 이상의 염제거율을 달성할 수 있는 조업조건을 도출할 수 있었다.