

우라늄 전착물 내의 Uranium과 Salt의 고액분리 특성에 관한 연구

박기민, 권상운, 박성빈, 김정국

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

kmpark1@kaeri.re.kr

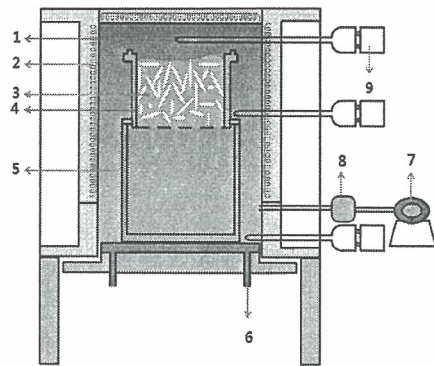
1. 서론

핵연료의 재활용 기술 중, Pyroprocessing은 사용 후 핵연료를 전기적인 방법을 이용하여 U (Uranium), TRU (TRansU ranic), RE (Rare-Earth)등을 회수하는 기술이다. 이 기술은 피복관 제거 및 분말화 시키는 전처리공정, 산화물 핵연료를 환원을 통하여 금속으로 전환 시키는 전해환원공정, 환원된 금속체에서 핵종을 회수하는 전해정련 및 전해제련공정 그리고 각 공정에서 생성되는 폐기물을 안정화 시키는 폐기물처리공정 등 크게 4개의 공정으로 이루어져 있다.¹⁾ 이러한 공정 중 Uranium을 효과적으로 회수할 수 있는 전해정련 공정은 전기·화학적 반응을 이용하여 U만을 회수하는 Electrorefining(ER), ER에서 회수한 우라늄 전착물 (Uranium deposit ; UD)내에 잔류하는 공용염을 제거하기 위한 염 증류 (Cathod process;CP), 염이 제거된 우라늄을 ingot화 시키는 ingot 공정 등으로 분류할 수 있다. 순수한 Uranium을 회수하기 위해서는 염 증류가 중요한 부분을 차지하고 있으며, 이에 적용 가능한 이론적 연구는 활발히 연구되어 지고 있으나,²⁾ 이론적 배경을 구현해줄 수 있는 장치분야는 아직도 미비한 수준에 머무르고 있다. 따라서 본 연구에서는 염 증류 시 염이 일차적으로 액상화 된 후 기상화 되는 점을 이용하여 액상화 될 때 충분한 염을 제거함으로써 염 증류 효과 상승 및 회수, 그리고 투입되는 에너지 절감을 목적으로 고액분리 및 증류를 동시에 할 수 있는 장치를 설계하고,³⁾ 그 기능 중 우선적으로 고액분리를 실험, 그 특성을 파악하여 봄으로서 향후 기초자료로 활용하고자 하였다.

2. 실험장치 및 방법

본 연구에 사용된 회분식 실험장치의 모식도는 Fig. 1에 나타내었다. 실험장치의 구성은 크게 우라늄 전착물을 주입할 수 있는 Feeding (Sieve)부, 열원으로서 Heater 2개 및 실제 반응조 내부의 온도를 측정할 수 있는 Thermocouple 3개로 이

루어진 Heating부, 분리된 Salt를 회수하기 위한 Collection basket부, 반응조 내부의 진공도 유지를 위한 진공펌프와 Uranium 산화를 막기 위해 Argon 분위기를 조성하기 위한 Argon 가스 주입부 등으로 이루어져 있다. 실험방법은 Heater 1 : 550~650 °C, Heater 2 : 700 °C로 하여 온도구배 (Temp. slope)를 갖도록 하고, 우라늄 전착물의 총 무게는 약 50 g, 진공도 약 25~35 Torr의 범위에서 진행하였으며, 우라늄 전착물 주입 후 총 반응유지 시간은 1시간으로 하였다. 실험 변수는 온도와 진공도에 따른 염의 고액분리현상을 관찰 하였고, 실험이 종료된 후 Salt basket와 Uranium이 들어있는 Sieve를 회수하여 무게를 측정 후 물질수지 식을 이용하여 염의 분리·회수된 양을 계산하였다.



1. Reactor 2. Heater 3. Uranium deposits
4. Sieve 5. Salt basket 6. Cooling line
7. Vacuum pump 8. Filter 9. Thermocouple

Fig. 1. Detail scheme of the reactor for salt separation in uranium deposit

3. 결과 및 고찰

반응조 내부의 염과 우라늄의 분리 거동을 알아보기 위하여 Sieve에 순수공용염 (Pure salt) 100 g, DU 50 g을 각각 충전 시킨 후 실험하였다. 사용된 Sieve는 mesh number 100 (150 μm)로 스테인레스로 제작 되었으며, 온도의 변수는 각각 550 °C, 600 °C, 650 °C, 내부의 진공도는 35 Torr

로 고정시켜 실험하였다. Fig. 2는 실험종료 후 회수된 염의 형태를 보여주고 있으며, 회수된 염의 양을 수치적으로 정리한 결과를 Table 1에 나타내었다.

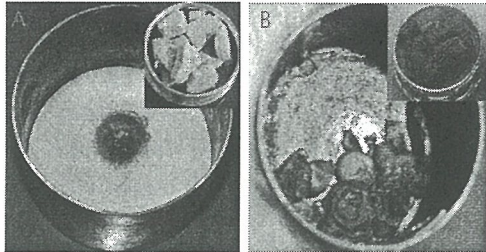


Fig. 2. Recovered salt form. A: Pure salt, B: Uranium deposits. (600 °C)

Table 1. The amount of salt recovery at various temperature (unit : wt%)

550°C		600°C		650°C	
A	B	A	B	A	B
96.8	7.9	97.9	35.1	98.5	32.7

A: Pure salt, B: Uranium deposits

그림과 표에서 보듯이 순수 염을 이용한 염의 분리 양상은 온도가 상승할수록 그 분리양도 증가하는 결과를 보였고, 우라늄 전착물의 경우 염의 분리양은 증가하다가 감소하는 경향을 나타내었다. 이러한 원인은 우라늄 전착물 내에 우라늄 입자가 보유하고 있는 공극의 크기 차이로, 높은 염의 제거속도에 비례하여 공극의 붕괴속도도 빨라져 650 °C가 더 적은 분리 양을 보인 것으로 사료된다. 위의 실험조건과 동일한 조건에서 온도를 600 °C로 고정하고 진공도를 25 Torr, 30 Torr, 35 Torr로 각각 변화하면서 실험하였고 그 결과를 Table 2에 수록하였다. 실험결과 25 Torr와 30 Torr에서 각각 약 0wt%와 0.43 wt%의 염 회수율을 보임으로서 우라늄 전착물을 이용한 염의 효과적인 고액 분리는 반응조 내부의 압력변화의 영향은 미비한 것으로 나타났다.

Table 2. The amount of salt recovered at various vacuum conditions (600 °C) (unit : wt%)

	25 Torr	30 Torr	35 Torr
DU	0.00	0.43	35.1

또한 우라늄 전착물 내 염의 함유량에 따른 고액 분리 정도는 U : 공용염 (LiCl-KCl)의 무게비가 약 1.16 : 1 일 때의 염 회수율은 약 97.1 wt%를 보였고, 7.23 : 1 일 때 약 0.0 wt%로 공용염이 많이 함유된 우라늄 전착물에서 효과적인 고액분리가 일어남을 알 수 있었다.

4. 결론

염 증류 장치를 이용한 우라늄 전착물 내의 우라늄과 공용염의 고액분리에 대한 결론은 아래와 같다.

- 순수 염을 이용한 고액분리 경향은 온도가 높을수록 높은 회수율을 보였으며, 반응조 내의 압력변화에 대한 염의 회수율 변화에는 그 영향이 미비한 것으로 나타났다.
- Uranium deposit의 uranium과 염의 고액분리 경향은, 온도가 높을수록, Uranium 함유량이 낮을수록 높은 염 회수율을 나타내었다. 그러나 반응조 내부의 압력변화는 미비한 영향을 미치는 것으로 나타났다.
- 또한 효과적인 고액분리를 위한 조건으로 Uranium의 입자와 입자 사이의 공극도 중요한 요인임을 알 수 있었다.

5. 참고문헌

[1] Jeong-Guk Kim, Kwang-Rag Kim, In-Tae Kim, Do-Hee Ahn and Han-Soo Lee., "Thermal Release of LiCl Waste Salt from Pyroprocessing", J. of the Korean Radioactive Waste Society, Vol. 7(2), pp. 73-78, 2009.

[2] LILY L. WANG and TERRY C. WALLACE, SR, " Vacuum Evaporation of KCl-NaCl Salts: Part I. Thermodynamic Modeling of Vapor Pressures of solid and Liquid solutions", Metallurgical and Materials transactions B, Vol. 27B, pp. 141-146, 1996.

[3] 권상운, 박기민, 김정국, 박성민, 김광락, 백승우, 이한수., "우라늄 전착물로부터의 염 제거장치 및 이를 이용한 염 제거 방법", 대한민국 특허, 출원번호 10-2010-0053953, 2010.