

사용후핵연료 처리를 위한 고효율전해정련기 전산해석적 검증 및 전작거동 예측

김승현, 이종현, 박성민*, 이성재*, 김정국*, 이한수*

충남대학교 녹색에너지기술전문대학원, 대전광역시 유성구 대학로79

*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

ilbtheone@cnu.ac.kr

1. 서론

용융염을 이용한 파이로 공정(pyroprocessing)은 핵확산저항성 및 고생산성을 갖고 있어서 차세대 핵연료 순환공정 기술로 주목받고 있다. 그러나 고농도 핵분열물질 및 방사능을 수반하여 개발에 있어 bottleneck이 존재한다. 따라서 보다 체계적인 개발을 위하여 기존의 실험적 연구는 물론 전산 모형을 이용한 개발 방향 모색이 매우 필요하다. 고온 용융 전해 분리공정의 전산 모형은 많은 수의 화학원소들이 급격한 고온 전기화학반응을 일으키며, 급속 이온의 전작 문제를 다루어야 하므로 수치해석학적으로 매우 복잡한 문제에 해당하여 현재까지 신뢰성 있는 모형 개발이 이루어지지 않고 있다. 따라서 본 연구는 다중 배열 전극으로 이루어진 공학규모 전해정련기에서의 공정시 전류밀도 및 최적의 전기장 분포를 해석하기 위한 모델 수립을 목적으로 하며 또한 전해정련 반응기의 작동 공정을 전산해석으로 분석하여 향후 기술 개발방향과 scale-up에 대비한 기초 데이터를 설정하는데 기여한다. 따라서 본 연구에서는 기본적으로 Butler-Volmer 식을 이용한 Tertiary current density distribution 해석을 기반으로 하며 따라서 전산해석 모델의 검증을 위하여 전극에서의 기본적인 전기화학 반응을 구현하고 이를 통하여 실험 결과의 타당성을 확인하고, 추후 실험결과를 예측하는데 사용할 수 있도록 한다. 또한 고효율전해정련기의 최적의 전작 조건과 공정 조건을 찾기 위하여 전극 배열과 전극 형상에 대한 체계적인 분석이 필요하며 이를 통하여 더욱 처리속도(throughput)가 높은 전해정련기를 개발하는데 기초적인 데이터를 제공하는데 그 목적이 있다. 이를 위하여 본 연구에서는 전자기장 해석에 특화된 상업적 유동해석 코드인 Comsol4.2a의 electrodeposition 모듈을 이용하여 Tertiary모형을 바탕으로 전해정련 시스템에서 정련특성을 예측하기 위한 모델을 설정하고 물질전달 및 열역학적인 자료를 기반으로 전산모사를

통한 전작거동 해석을 수행하였으며, 전해정련기의 전극에서의 전극반응 평가를 위한 LSV(Linear Sweep Voltammetry)와 CV(Cyclic Voltammetry)법을 이용하여 검증절차를 수행하였다. 이를 통하여 전산모델의 신뢰성을 확인하고자 하였다. 이를 바탕으로 공학규모 전해정련기의 최적구조 설계를 위한 전기수력학적 전산해석 모델과 적용 방안을 제안하고자 한다.

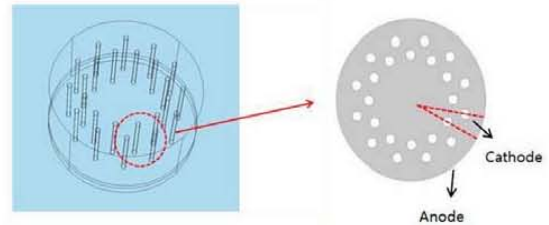


Fig. 1. 효율적인 전산해석을 위한 전산모델.

2. 본론

2.1 실험방법

공학규모 전해정련반응기의 정련특성 예측모델의 검증을 위해 2D 비교 해석이 이루어졌다. Fig. 1. 와 같이 공학규모 전해정련기의 실제 실험장치의 제원에 따라 효율적인 계산을 위하여 대칭이 되는 최소한의 면적에 대한 전산해석 수행이 이루어졌다. 전극표면에서의 전극반응은 전하 이동 과정이 속도를 결정하는 경우의 전극 전위(과전압)와 전류 밀도의 관계를 나타내는 전기화학계의 반응속도론으로 일반화된 Butler-Volmer 전극 반응식을 이용하였다.

$$I_i = I_{0,i} \left[C_R \exp\left\{-\frac{\alpha n F}{RT} \eta_i\right\} - C_o \exp\left\{\frac{(1-\alpha)n F}{RT} \eta_i\right\} \right]$$

Fig. 2. 1-31. 을 통해 인가 전류 $1\text{mA}/\text{cm}^2$, $10\text{mA}/\text{cm}^2$, $50\text{mA}/\text{cm}^2$, $100\text{mA}/\text{cm}^2$ 각 조건에서 모두 전류밀도 증가에 따라 총 전작량이 증가하는

것을 알 수 있다. $100\text{mA}/\text{cm}^2$ 의 전류를 가해줄 때 최대 18kg의 우라늄이 전착됨을 알 수 있는데 실제 20kg/batch용량의 전해정련기의 throughput은 $0.83\text{kgU}/\text{hr}$ 이므로 전산모사 결과가 실제 실험으로 얻을 수 있는 우라늄의 전착량과 거의 흡사하다는 결과를 알 수 있다.

2.2 실험결과

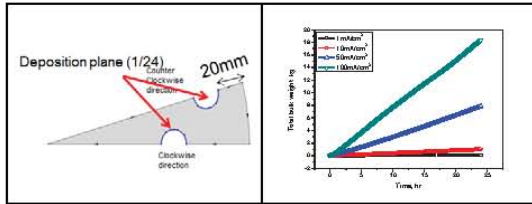


Fig. 2. 24시간 $100\text{mA}/\text{cm}^2$ 인가전류일 경우 19kg의 우라늄 전착.

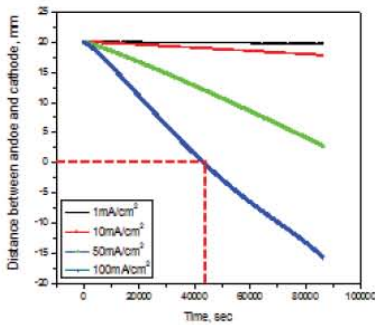


Fig. 3. 인가전류에 따른 음극 부위별(안쪽, 바깥쪽) 전착 두께.

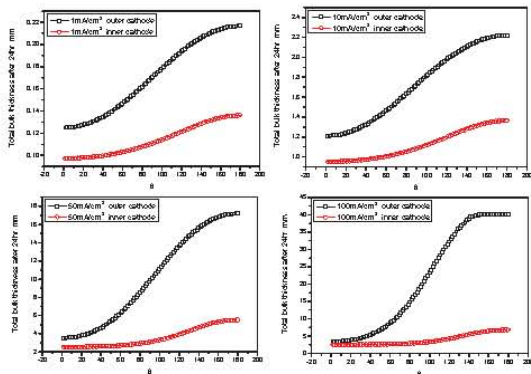


Fig. 4. 효과적인 스크래핑 개시 시간 예측.

Fig. 3. 인가 전류에 따라 모든 경우 바깥쪽 음극이 안쪽 음극보다 많은 전착으로 두께가 두껍게 성장되는 것을 알 수 있었으며 바깥쪽 음극의

경우 양극과 가장 가까운 최단 거리 부분에서 가장 두꺼운 우라늄 전착 두께를 보인다.

Fig. 4. 는 시간의 경과에 따라 인가 전류에 의해 음극에서 전착물이 전착되어 커나가게 되는 두께를 나타내는 그래프로써 양극과 음극 사이의 최대 거리는 20mm이므로 초기 상태를 20mm로 하고 이 값이 0으로 도달 할 때 까지의 시간을 통하여 스크래핑 시간을 예측할 수 있다. 인가 전류가 $100\text{mA}/\text{cm}^2$ 일 경우 약 41,000초(약 11시간) 이후 바깥쪽 음극의 전착물이 회전 양극 바스켓과 접촉하여 지속적인 공정을 위해서는 스크래핑을 하여야 함을 알 수 있다.

3. 결론

본 연구 결과 상용유동해석 프로그램인 Comsol의 electrodeposition modules 을 이용하여 전기화학모델을 커플링하여 파이로 공정에서의 전해정련기의 최적의 전기장 해석을 위한 전산모델을 마련하였으며 이러한 모델을 바탕으로 전해정련의 전산모사를 통해 주어진 정류류 전해운전조건에서 공간전해저동을 예측할 수 있었다. 또한 다성분계 환경에서의 불순물 거동 또한 예측이 가능하다는 가능성을 보였으며 최적의 공정을 위한 scraping개시 시간 예측이 가능하였다. 이러한 데이터는 추후 전해정련 공정에 미치는 중요 변수의 영향을 예측할 수 있고 이와 같은 수치해석을 통한 전기화학반응 모델은 실험적으로 달성하기 힘든 경제적인 전해정련 특성 정보를 제공할 수 있을 것으로 예상된다.

4. 감사의 글

본 연구는 한국연구재단 원자력연구개발사업의 기금을 지원받아 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

[1] Kim K. R, Paek S. W, and Ahn D. H. Electrochemo-Hydrodynamics modeling approach for a uranium electrowinning cell, International Conference on Mathematics and Computational Methods Applied to Nuclear Science and Engineering, (2011).