

# 스케일업 설계를 위한 산소농도 조절용 공기산화로에 대한 분석 An Analysis on Vol-Oxidizer with Oxygen Concentration Sensor for Scale-Up Design

\*#김영환<sup>1</sup>, 정재후<sup>1</sup>, 이효직<sup>1</sup>, 박병석<sup>1</sup>, 윤지섭<sup>1</sup>

\*Y. H. Kim(yhkim3@kaeri.re.kr)<sup>1</sup>, J. H. Jung<sup>1</sup>, H. J. Lee<sup>1</sup>, B. S. Park<sup>1</sup>, and J. S. Yoon<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 한국원자력 연구원

Key words : Vol-oxidizer, Oxygen, Concentration, Sensor, Pellets, Particle, Uranium Dioxide

## 1. 서론

원자력 발전소에서 발생한 사용후핵연료는 해마다 증가되고 있다. 국내에 있는 한국원자력연구소의 차세대관리공정시설에서는 사용후핵연료의 발생량을 줄이기 위하여 ACP(Advanced Spent Fuel Conditioning Process)가 개발되고 있다. 또한 ACP의 금속전환로에 팔산화삼우라늄을 공급하기 위하여 20 kgHM/batch의 우라늄디옥사이드 펠릿(pellets)을 처리할 수 있는 공기산화로가 개발되고 있다.

그러나 현재까지 국내외에서 개발된 공기산화로 성능은 우라늄디옥사이드 펠릿을 200 g~2 kg/batch까지만 처리할 수 있다.<sup>1)</sup> 미국에 있는 SRL(Savannah River Laboratory)에서는 트리튬(Tritium)을 제거하기 위하여 200 g/batch 사용후핵연료를 처리할 수 있는 경사형태의 공기산화로가 개발되었다(Stone, 1980).<sup>2)</sup> 또한, 미국의 ORNL(Oak Ridge National Laboratory)에서는 실험용 켈린형(kiln type) 공기산화로가 전처리공정에서 사용되었다(Burch et al., 1980).<sup>3)</sup> 일본 원자력연구소에서 재처리의 일환으로 트리튬 제거를 위해 사용후핵연료 2 kg HM/batch 용 수평형 공기산화로가 개발되었다(Gunzo UCHIYAMA et al., 1991).<sup>4),5)</sup> 이와 같이 현재까지 대부분의 연구는 재처리를 위하여 작은 실험실 규모로 연구가 되어왔다.<sup>4)</sup>

그러나 최근 일본에 있는 CRIEPI(Central Research Institute of Electric Power Industry)에서는 LWR(light-water-reactor)연료 생산을 위한 고온 재처리공정개발에 대한 스케일업(Scale-up) 연구에 대한 관심을 가지게 되었으며, 32, 48, and 192 ton/year용 공기산화로의 개념설계가 수행된 바 있다.<sup>6)</sup> 또한 미국의ORNL(Oak Ridge National Laboratory)에서도 0.5 MT/day 규모의 사용후핵연료를 처리하기 위한 공기산화로가 개발 중이다(Bill Del Cul et al., 2004).<sup>1)</sup>

본 논문에서는 3~4시간이 요구되는 수 kg의 우라늄디옥사이드의 산화에 비하여 13시간 이상(우라늄디옥사이드 20 kg 경우)의 장시간 산화가 요구되는 문제점을 해결하고, 처리성능이 높은 장치 개발을 위한 설계자료를 도출하고자한다. 또한 고효율 산화반응을 위한 최적 주입 산소농도를 찾고, 가열로 내부압력을 측정하여 상용화를 위한 실증용 대용량 공기산화로의 스케일업 설계자료를 생산하고자한다. 이를 위해 모의 사용후 핵연료를 제조하고 산소농도를 조절할 수 있는 공기산화로를 제작하였다. 또한 산소농도별 산화시간 및 반응 생성물인 팔산화 삼우라늄의 입도분포를 측정하였다. 그러나 한국에서는 실제의 사용후핵연료를 사용할 수 없기 때문에 사용전 우라늄디옥사이드 펠릿을 사용하였으며, 공기산화로가 반응 동안에 생성하는 휘발성 가스 처리 실험은 본 연구에 포함되지 않았다.

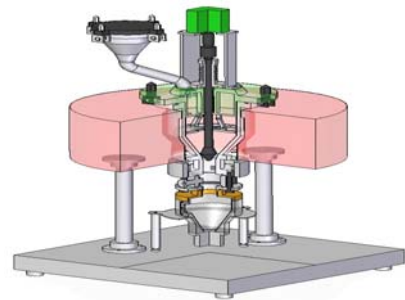
그 결과로서 산화를 위한 최적 산소농도는 50%임을 확인하였다. 또한 입도크기 분포는 산소농도의 증가에 따라 증가했으며, 가열로의 내부 압력은 산소농도의 증가에 따라 높아졌다. 본 연구의 결과의 설계 자료는 고효율 대용량처리를 위한 실증용 공기산화로 설계에 활용 될 수 있다.

## 2. 본론

### 2.1 산소 농도조절용 공기산화로

그림 1은 사용후핵연료를 재활용할 수 있는 한국원자력연구소의 차세대관리공정의 단위공정으로, 산소농도 조절이 가능한

공기산화로이다. 공기산화로 보다 이전의 공정인 슬리팅 장치에서 탈피복된 우라늄디옥사이드 펠릿이 공기산화로로 운반되고, 500 °C온도에서 공기를 공급하여 20~60 μm의 범위의 균질한 팔산화삼우라늄을 만든다. 그리고 다음공정의 금속전환장치로 이동된다.



(a) A 3-D modeling of vol-oxidizer with oxygen controller.



(b) A vol-oxidizer

Fig. 1 A vol-oxidizer with oxygen controller in the mock-up cell.

### 2.2 모의 핵연료 제조 및 모사 시험

그림 2와 같이 경수로용(PWR) 사용후(Spent Fuel)핵연료의 모사 펠릿 제조를 위한 모사 핵분열성 물질(10종)이 포함된 밀도별 예비모사 펠릿을 제조하였으며(1.24, 1.38, 1.52, 1.66, 1.80 g/cm<sup>3</sup>), 밀도별 산화 실험을 통한 최적 압분 밀도 및 크기 도출(1.24 g/cm<sup>3</sup>, Ø10×H 9.2 mm)하였다. 도출된 최적 압분 밀도를 고려하여 최적 분말화 특성을 갖는 경수로용 모사 사용후 핵연료 (Simulation Spent Fuel)을 45 kg 제조하였다.



Fig.2. Simulation Fuel(Ø10×H 9.2 mm)

모사 사용후핵연료를 이용한 분말화 시험 및 종합평가를 수행하였다. 이를 위해 공기산화로 실험장치(500 g/batch용)와함께 실험데이터의 획득을 위한 산소농도 조절 및 분석용 지르코늄옥사이드(ZrO<sub>2</sub>) Analyzer를 제작하였다.

그림 3과 같이 500℃에서 모사연료의 산소농도 별(21, 30, 40, 50, 60, 80 %) 산화시간 평가와 500℃, 산소 21%에서 모사연료와 비 모사연료의 산화시간 평가를 수행하였다. 그 결과 산소농도 21% 보다 산소농도 50%에서 산화지연시간을 49% 단축하였으며, 모사연료 산화지연시간은 12시간/20 kgHM 소요됐고, 비 모사연료는 8시간/20kgHM 걸렸다.

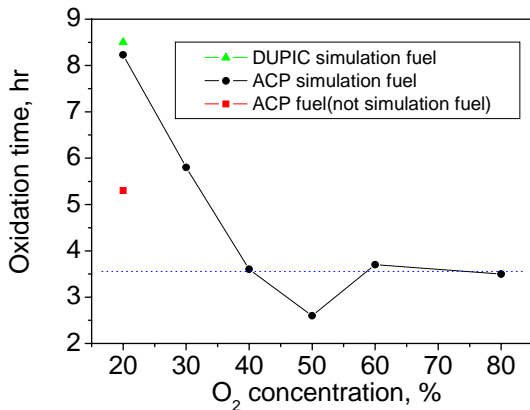


Fig 3. Oxygen concentration on the oxidation time.

모사 사용후핵연료 산화 조건별 분말의 입도특성 분석을 수행하였으며, 다음공정인 금속환원로의 반응효율을 높이기 위해서 분말입도가 100 μm이하의 범위에 있는지를 조사하였다. 모사연료 및 비 모사연료의 산소농도 별(20, 30, 40, 50, 60, 80 %) 산화실험 후, 그림 4와과 같이 입도분석(particle size distribution)을 수행한 결과, 모사연료의 평균 분말입도는 17.5 μm으로, 요구조건인 100 μm이하의 범위를 만족할 수 있었고, 마찬가지로 비 모사연료의 평균 분말입도도 45 μm로서 범위 내에 포함됐다.

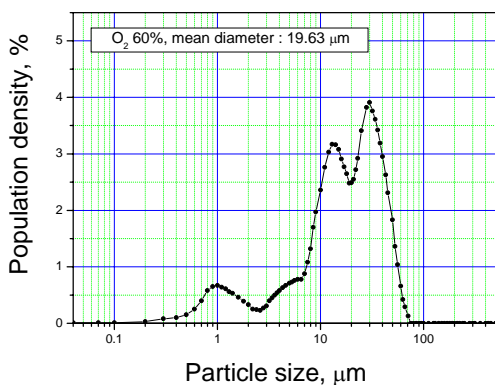


Fig. 4. Particle size distribution on the oxygen concentration(17.5 μm).

### 2.3 공기산화로의 장치의 scale-up데이터 생산

모사연료 분말을 농도별로 샘플링하여 XRD, SEM, ICP 분석을 수행하였으며, 고온에서의 가열로 두께 결정을 위한 온도, 농도 변화에 따른 장치 내부압력 측정하여 scale-up 자료를 확보하였다(500℃ 및 산소농도 80%에서의 내부압력은 0.4 kg/cm<sup>2</sup>). 또한 high-throughput 공기산화로 장치 개념설계 데이터 생산하였다.(50 kgHM/batch)

## 4. 결론

본 논문에서는 3~4시간이 요구되는 수 kg의 우라늄디옥사이드의 산화에 비하여 13시간 이상(우라늄디옥사이드 20 kg 경우)의 장시간 산화가 요구되는 문제점을 해결하고, 처리성능이 높은 장치 개발을 위하여 산소농도 조절용 공기산화로의 실험과 분석을 하여 Scale-up 설계 자료를 확보하였다. 이를 위해 모의 사용후핵연료를 제조하고 산소농도를 조절할 수 있는 공기산화로를 제작하였다. 또한 산소농도별 산화시간 및 반응 생성물인 팔산화 삼우라늄의 입도분포를 측정하였다. 그 결과로서 실증용 분말화 장치 모사 시험을 위하여 PWR S/F 최적 모사펠릿을 제조하였으며, 입도분석(particle size distribution)을 수행한 결과, ACP Simulation Fuel의 평균 분말입도는 17.5 μm으로 요구조건인 100 μm이하의 범위를 만족할 수 있었다. 또한 500℃에서 Simulation Fuel의 산소농도 별(21, 30, 40, 50, 60, 80 %) 산화시간 평가에서 산소농도 50%에서 21%보다 산화시간을 49% 단축할 수 있었다. 고온에서의 가열로 두께 결정을 위한 온도, 농도 변화에 따른 장치 내부압력을 측정하여 scale-up 자료를 확보하였으며, 50 kgHM/batch용 high-throughput 탈피복/분말화 일체형 장치의 개념설계 데이터를 생산하였다.

## 후기

본 연구는 과학기술부의 원자력 중장기연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

## 참고문헌

- 1 Cul B.D., Hunt R.H., Spencer B., 2004, "Advanced head-end processing of spent fuel," 2004 American Nuclear Society Winter Meeting, Washington DC, Nov., 16.
- 2 Stone J.A., 1980, "Vol-oxidation studies with UO<sub>2</sub> reactor fuels" ANS, Meeting on Fuel Cycles for Eighties, DP-MS-80-9, Sep.-Oct.
- 3 Inoue A., Tsujino T., 1984, "Dissolution rate of U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> powders in nitric acid," Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., Vol. 23, pp.122~125.
- 4 G. Uchiyama, M. Kitamura, K. Yamazaki, et al., 1992, "Study on voloxidation process for tritium control in reprocessing," Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle, Vol. 17, No.1, pp. 63~79.
- 5 Uchiyama G., Kitamura M., Yamazaki K., 1991, "Development of vol-oxidation process for tritium control in reprocessing," JAERI-M, 91-199, Nov..
- 6 Nishimura T., Sakamura Y., Inoue T., 2005, "Conceptual design study of pyroprocessing facilities for LWR MOX fuel using electroreduction and electrorefining techniques," Proceedings of GLOBAL 2005, Tsukuba, Japan, Oct. 9-13, 218.