

우라늄-카드뮴 합금의 제조 및 증류거동조사

김지용, 안도희*, 권상운*, 김광락*, 백승우*, 김시형*

UST(University of Science & Technology), 대전광역시 유성구 과학로 113번지

*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

kjy82@kaeri.re.kr

1.서론

최근 세계적으로 에너지의 고갈, 환경오염 등과 관련된 문제점들이 대두되어지고 있으며 이 문제점을 해결하기 위한 가장 효율적인 에너지원으로써 원자력에너지가 각광받고 있다. 또한 에너지 자원부족문제의 해결과 지구의 온난화의 주범인 이산화탄소의 배출량을 감소시키기 위한 에너지원으로 원자력에너지의 사용이 향후 계속 증가할 것으로 예상된다.

원자력에너지는 이러한 장점을 통해 우리에게 필요한 전력을 공급해주지만 반면에 그에 따른 부산물인 사용후핵연료의 처리문제도 함께 발생하고 있다. 이러한 문제점을 해결하기 위한 사용후핵연료재활용기술의 하나로 각광받고 있는 파이로 프로세스공정은 기존의 처리기술에 비해 핵확산저항성이 상대적으로 높으며 경제적이라는 이유로 사용후핵연료를 환경 친화적으로 관리하기에 적합한 기술로 인식되고 있다. 이러한 파이로 프로세스공정에서 전해환원(electroreduction)공정은 산화물 핵연료를 금속으로 전환시켜 후속공정인 전해정련에 금속연료를 제공하며 전해정련(electrorefining)공정은 500℃의 LiCl-KCl 용융염 매질에서 고체금속을 이용하여 우라늄을 선택적으로 회수한다. 전해제련(electrowinning)공정에서는 액체카드뮴음극(LCC, Liquid Cadmium Cathode)를 사용해 잔여우라늄과 TRU를 함께 회수하게 된다. 전해제련공정 중 카드뮴 증류공정은 LCC에서 회수된 actinide를 증기압 차이를 이용하여 분리하는 공정이다[1].

본 연구에서는 카드뮴 증류공정의 개발을 위해서 다양한 조건에서 카드뮴 증류속도를 측정하고 우라늄-카드뮴 합금을 제조한 후 이의 증류거동을 알아보았다.

2.본론

Fig. 1에는 본 연구에서 사용된 수직형 카드뮴 증류장치의 개략도를 나타내었다. 수직형 카드뮴 증류장치는 증류탑 본체, 진공펌프, 배가스 처리장치 및 제어시스템으로 구성되어 있으며, 증발조와 응축조의 crucible은 각각 알루미늄과 STS로 제작하였다[2].

우라늄-카드뮴 합금을 제조하기 위한 전해실험은 산소와 수분의 농도가 5ppm이하로 유지되는 글로브박스의 내부에서 수행되었으며 사용된 전해조는 열전대, 교반기, reference electrode(Ag/LiCl-KCl-1wt% AgCl), anode(uranium basket), cathode(liquid cadmium) 등으로 구성하였다. 또한 전해제련 용융염 전해조는 직경 15cm, LCC는 직경 5cm의 알루미늄 도가니를 사용하였으며 용융염의 온도는 500℃로 하였다. 실험 중에 발생하는 uranium dendrite를 제거하기 위해 mesh형 LCC구조를 사용하였으며 우라늄의 전착실험은 100mA/cm²의 전류밀도에서 4.25Ah까지 정전류 실험을 수행하였고 Faraday식에 의해 계산된 우라늄의 이론적 전착량은 3.8%로 추정된다.

우선적으로 수직형 카드뮴 증류장치에서 순수 카드뮴 금속을 증류온도 500~650℃의 범위에서, 증류압력은 0.1torr이하에서 실험을 수행하였다(Fig. 2). 이 조건에서 카드뮴의 증류속도는 12.3~40.8g/cm²h의 범위였으며 이 속도값은 아래의 Hertz-Langmuir 식과 비교한 결과 0.01이하의 증발계수 값을 나타내었다.

$$M = \frac{aP_i}{\sqrt{2\pi mRT}} \dots\dots\dots (1)$$

전해실험을 통해 제조된 U-Cd합금을 증류조 도가니에 넣어 600℃, 진공에서 등온조건으로 증류거동을 조사하였다. 그 결과 U-Cd합금의 증류속도는 동일조건인 순수한 카드뮴 금속의 증류속도에 비해 느리다는 것을 알수 있었다.

그리고 기체상수(R)와 관련지을 수 있다.

$$D_i = RTu_i \dots\dots\dots (4)$$

2.2 결과 및 토론

용융염 전해질의 유동장 영역을 격자화하고, 전극면을 포함한 유동마찰과 경계조건이 적용되는 면을 프리즘 격자로 처리하여 전기장 모사를 위한 도메인을 설정하였다. Ansys-CFX[3] 계산 체계(Fig. 1)에서 기본 유동 지배식 및 이온 전달방정식으로 구성되는 연립편미분방정식을 유한체적법으로 계수 루프를 통한 반복계산으로 해를 구하였다. 전해질의 유동과 이온확산 및 대류를 통한 이온의 플럭스를 전류 벡터로 연계하여 전기화학모델을 커플링할 수 있었다.

이온의 전극반응 속도식으로부터 전극계면의 Helmholtz 이중층 내부에서 정의한 활성화과전위를 도출하였으며, 벌크 전해질에서는 저항전위차를 고려하여 전체적인 전해질의 전위차를 예측할 수 있었다. 전극면에서의 국부 전류밀도 분포는 농도구배로부터 구할 수 있었으며, 전극면 형상에 따라 와류 유동에 의한 영향으로 수렴조건이 제한되는 경우도 있었다.

대상 전해셀을 단순화시켜 해석하였고, 앞으로 보완되고, 보다 다양한 조건에서의 전해로의 수치 모사를 실행하는 것이 목적이다. 수행한 전산 시뮬레이션 결과 각 중요 변수에 대한 영향을 미리 예측할 수 있기 때문에 셀의 치수나 전해조건들이 변화되었을 때의 전해분리의 성능을 예측할 수 있다. 실제 전해로를 설계하고 제작하는데 중요한 기초자료를 제공함은 물론 최적의 운전조건을 결정하는데 많은 도움이 될 것이다.

3. 결론

용융염 전해질을 사용하는 전기화학반응기를 대상으로 CFD 기반에서 전기화학모델을 커플링하여 전기장 해석을 위한 전산모델을 마련하였다. 수립된 모델로 주어진 정전류 전해운전조건에서 공간 전해특성을 예측할 수 있었다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 원자력연구개발사업의 지원으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] 김광락 등, 한국방사성폐기물학회, 2009년 춘계학술대회 논문요약집, pp.357-359, 2009
 [2] A. J. Bard and L. R. Faulkner, Electrochemical Methods, Fundamentals and Applications, John Wiley & Son, New York, p.87, 2001
 [3] ANSYS CFX-12.0 Solver 2008 (Cannonsburg: USA/ANSYS:www.ansys.com)

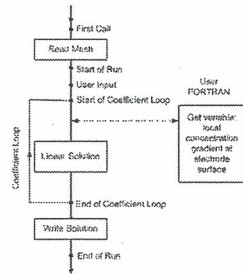


Fig. 1. Computational loop in CFX platform