

## 공학규모 전해정련장치 설계를 위한 Tertiary 전산 모델 검증

김승현, 박경태, 이종현, 박성빈\*, 김정국\*, 이한수\*

충남대학교 녹색에너지기술전문대학원, 대전광역시 유성구 대학로79

\*한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045번지

[ksh@pyroprocessing.net](mailto:ksh@pyroprocessing.net)

### 1. 서론

최근 지구 온난화와 화석연료의 고갈로 인해 미래 에너지원으로 원자력의 비중은 점차 증가될 것이다. 하지만 이와 더불어 부산물로 발생하는 사용후핵연료(spent fuel)의 발생 누적량 또한 기하급수적으로 증가할 것이다. 지속가능한 발전을 위해서는 이 사용후 핵연료의 안전하고 효율적인 처리 방안이 필요한데 그 대안으로 pyroprocessing기술이 대표적이다. pyroprocessing은 플루토늄을 따로 분리하지 않고 TRU (Np, Pu, Am, Cm 등)와 함께 회수하여 재활용하기 때문에 기존의 습식 재처리공정에 비해 핵확산 저항성(proliferation)이 매우 높게 평가되고 있다. 사용후 핵연료에 포함되어 있는 우라늄을 회수하기 위한 방법으로 전해정련법을 통해 다량의 우라늄을 회수하기 위한 방법으로 많은 연구가 진행되어지고 있다. 전해정련기(electrorefiner)는 일반적으로 회전하는 양극 바스켓과 다중채널(multi-channel)의 음극으로 구성된다. 금속 우라늄을 분리하여 많은 양을 회수하기 위해서는 무엇보다 전해정련기의 효율성을 높이는 것이 필요한데 이를 위해 음극의 면적을 증가시키고 양극과의 간격을 좁힘으로 발생하는 물리적 저항을 줄이며 음극의 배열을 달리하여 최적의 전기장을 발생시켜 효율성을 높이는 방법이 있다. 이러한 효율성 향상을 위해서는 많은 실험적인 노력이 필요한데 본 시뮬레이션을 통해 전해정련장치의 scale-up하는데 필요한 기초데이터 확보에 기여하며 최적의 전극 배열 형태를 예측하는데 도움을 줄 수 있다.

따라서 본 연구에서는 전자기장 해석에 특화된 상업적 유동해석 코드인 Comsol4.2의 electrodeposition 모듈을 이용하여 Tertiary모델을 바탕으로 전해정련 시스템에서 정련특성을 예측하기 위한 모델을 설정하고 물질전달 및 열역학적인 자료를 기반으로 전산모사를 통한 전해거동 해석을 수행하였으며, 전해정련장치 검증 실험과 CV(Cyclic Voltammetry)법을 이용하여 검증결과를 수행하였다. 이를 통하여 전산모델의 신뢰성을 확인하고자 하였다. 이를 바

탕으로 공학규모 전해정련기의 최적구조 설계를 위한 전기수력학적 전산해석 모델과 적용 방안을 제안하고자 한다.

### 2. 본론

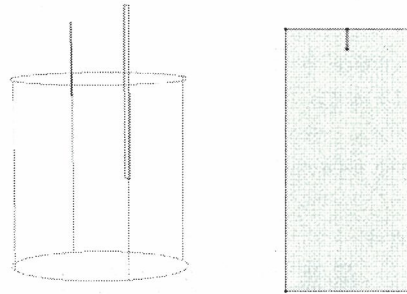


Fig. 1. (a) 전해정련실험장치의 3D모델 (b) CV해석을 위한 2D모델.

작업전극(working electrode)	value
직경(diameter, mm)	0.5mm
염에 담긴 깊이(length, mm)	10mm
표면적(area, mm <sup>2</sup> )	158.3mm <sup>2</sup>
확산계수(diffusion coefficient)	value
D_A(A의 확산계수)	1e-9m <sup>2</sup> /s
D_B(B의 확산계수)	1e-9m <sup>2</sup> /s
초기농도(initial concentration)	value
C_A(A의 초기농도)	1mol/m <sup>3</sup>
C_B(B의 초기농도)	0mol/m <sup>3</sup>

#### 2.1 실험방법

공학규모 전해정련반응기의 정련특성 예측모델의 검증을 위해 2D 비교 해석이 이루어졌다. 실제 실험장치와 전산해석 수행을 위한 값을 Fig.1에 나타내었다. 용융염 전해질과 작업전극(working electrode)의 전극표면에서의 전극반응은 전하 이동 과정이 속도를 결정하는 경우의 전극 전위(과전압)와 전류 밀도의 관계를 나타내는 전기화학계의 반응속도론으로 일반화된 Butler-Volmer 전극 반응식을 이용하였다.

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

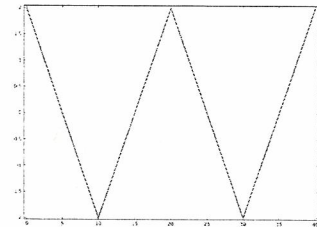


Fig. 2. 시간에 따른 전극전위를 가하기 위한 삼각파형 (triangular waveform).

cyclic voltmetry를 구현하기 위해 Fig.2와 같이 주어진 비율(scan rate)로 증가하는 전압을 한 방향으로 전압을 걸어준 후, 전압이 일정 크기에 도달한 시점에서는 같은 비율로 변하는 전압을 반대방향으로 걸어주는 삼각파형(triangular waveform)을 적용시켰다.

### 2.2 실험결과

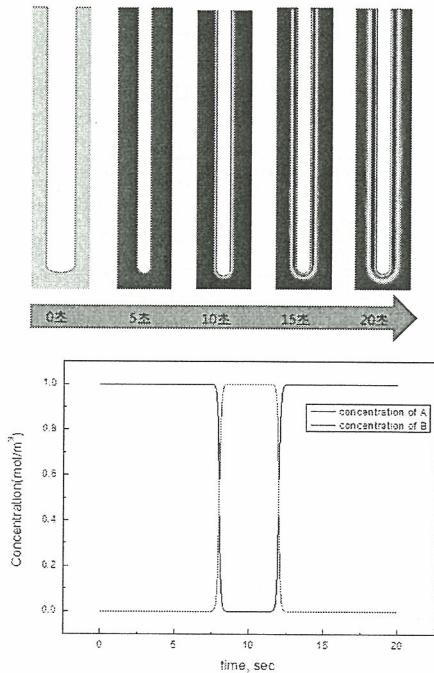


Fig. 3. 시간 경과에 따른 확산영역이 점차 bulk부분으로 퍼져나가는 모습과 그에 따른 A, B의 농도 profile.

전극에 전압이 걸리면 전극/용액 계면에 존재하던 ox가 모두 환원되면서 많은 전류가 흐른다. 이

때문에 전극/용액 계면에서는 ox가 모두 소멸된 상태이고 전극/용액 계면에 인접한 용액 층의 경우 ox의 농도는 초기농도를 유지하고 있다. 따라서 두 용액 사이에서 ox의 농도차이가 발생하고 그로 인해 인접 용액 층으로부터 전극/용액 계면으로 ox의 확산이 시작된다. 시간 경과에 따라 확산영역이 점차 용액의 bulk부분으로 퍼져나가는 모습을 Fig.3에 나타내었다.

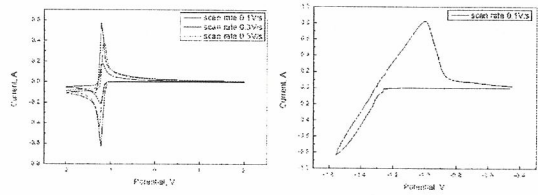


Fig. 4. scan rate증가에 따른 전류크기 변화 및 Zr전해 정련 실험 CV그래프.

Fig.4 는 scan rate를 변화시키며 얻어지는 cyclic voltmetry의 변화모습을 보여준다. Zr전해정련실험을 통한 검증에 위한 CV측정결과 실제실험에서의 경향과 유사한 scan rate가 커짐에 따라 음극전류도 증가하는 것을 볼 수 있으며 실제 실험에서 보여지는  $Zr^{4+}$ 로 이온화되는 환원전위 -1.2V가 나타나는 것을 알 수 있다.

### 3. 결론

Zr전해정련 실험을 이용하여 CV측정을 통해 검증 결과 실제 실험과 상당히 유사한 CV결과를 얻었으며 이러한 데이터는 추후 전해정련 공정에 미치는 중요 변수의 영향을 예측할수 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] Three-dimensional multispecies current density simulation of molten-salt electro-refining, J. of Alloys and Compounds 503 (2010) 177 - 185.