

Measurement of Terminal Velocity for Scatter Prevention of Powder in the Voloxidizer for Oxidation of UO₂ Pellet

UO₂ 펠릿 산화로의 분말 비산 방지를 위한 최종속도 측정

Young-Hwan Kim, Ji-Sup Yoon, Jae-Hoo Jung, Jae-Hyun Jin and Dong-Hee Hong

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duckjin-dong, Yuseung-Gu, Daejeon

yhkim3@kaeri.re.kr

김영환, 윤지섭, 정재후, 진재현, 홍동희

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

(Received November 30, 2004 / Approved May 6, 2005)

Abstract

A voloxidizer for a hot cell demonstration, that handles spent fuels of a high radiation level in a limited space should be small and spent fuel powders should not be dispersed out of the equipment involved. In this study a density rate equation as well as the Stokes' equation has been proposed in order to obtain the theoretical terminal velocity of powders. The terminal velocity of U₃O₈ has been predicted by using the terminal velocity of SiO₂, and then determination has been the optimum air flow rate which is able to prevent powders from scattering. An equation which has shown a relationship between theoretical terminal velocities of U₃O₈ and SiO₂ has been derived with the help of the Stokes' equation, and then an experimental verification made for the theoretical Stokes' equation of SiO₂ by means of an experimental device made of acryl. The theoretical terminal velocity based on the proposed density rate equation has been verified by detecting U₃O₈ powders in a filter installed in the mock-up voloxidizer. As the results, the optimum air flow rates seem to be 20 LPM by the Stokes' equation while they are 14.5 L/min by the density rate equation. At the experiments with the mock-up voloxidizer, a trace amount of U₃O₈ seems to be detectable at the air flow rate of 14.5 L/min by the density rate equation, but U₃O₈ powders of 7 μ m diameter seem detectable at the air flow rate of 20 L/min by the Stokes' equation. It is revealed that 14.5 L/min is the optimum air flow rate which is capable of preventing U₃O₈ powders from scattering in the UO₂ voloxidizer and the proposed density rate equation is proper to calculate the terminal velocity of U₃O₈ powders.

Key words : SiO₂, UO₂ pellet, Terminal velocity, U₃O₈, Demonstration, Voloxidizer

요약

실증용 UO_2 pellet 산화로의 실증을 위한 제한된 핫셀 공간 안에서 사용후 핵연료를 취급하는 산화로는 소형화 하여야 하고, 사용후 핵연료 분말은 UO_2 pellet 산화로 장치로부터 비산되지 않아야 한다. 본 연구에서는 분말의 최종속도를 구하기 위하여 Stokes식과 밀도비식을 제안하였다. U_3O_8 의 최종속도는 SiO_2 의 최종속도를 사용하여 예측하였고, 비산방지를 할 수 있는 최적유량을 결정하였다. SiO_2 의 이론 최종속도 식을 검증하고, U_3O_8 과 관계식을 예측하기 위하여 아크릴 장치를 만들었다. 목업시설에 설치된 산화로에서 제안된 이론최종속도식인 Stokes식의 20 L/min과 밀도비식의 14.5 L/min을 적용하여 U_3O_8 분말의 필터감지에 의해 검증하였다. 그 결과 밀도비식에 의한 14.5 L/min은 U_3O_8 이 전혀 검출되지 않았고, Stokes식의 20 L/min에서는 평균 7 μm 의 입도분말이 검출되었다. 따라서 UO_2 pellet 산화로에서 U_3O_8 이 비산되지 않는 최적유량은 14.5 L/min임을 알 수 있었고, 제안된 밀도비식이 바람직함을 알 수 있었다.

중심단어 : SiO_2 , UO_2 pellet, 최종속도, U_3O_8 , 실증용, 산화로

I. 서론

원자력 발전소에서 사용하고 난 핵연료는 해마다 그 발생량이 증가하고 있다. 매년 발생되는 화학적 독성이 강한 방사성 폐기물량을 줄임으로써 방사성 위험도를 감소하고 환경적 위험으로부터 안전하게 보관 관리를 위하여 차세대관리 공정을 개발하고 있다. 차세대관리 공정들 중에서 방사성 독성이 강한 특정원소를 추출하는 금속전환로의 반응효율을 높이기 위해서 산화로에서 UO_2 pellet을 산화하여 균질한 U_3O_8 분말을 공급하여야 한다. UO_2 pellet 산화로의 최종속도 측정 실험의 목적은 범용의 실증용 UO_2 pellet 산화로의 기본설계 자료 산출을 위한 것이다. 국외 연구동향을 보면 미국의 ANL에서는 AIROX 기술에 바탕을 둔 AFCI(Advanced Aqueous Separations) 연구의 일환으로 DOEX(Decladding via the Oxidation of Spent Oxide Fuel)와 핵분열성 물질에 대한 휘발 특성관련 분말의 필터 포집에 관한 연구를 수행하였다. 일본의 JAERI는 FR fuel cycle 개발 프로그램의 일환으로 1990년대 2 kgHM/batch 규모의 공정장치를 개발하였고, 2005년에 재처리시험시설에 적용하기 위하여 공학 규모의 voloxidizer를 개발함에 있어서 수평형태 장치의 공기흐름에 대한 분말비산 연구

를 수행하였다[5]. 설계자료 산출을 위해서 핫셀 공간은 제한되어 있고, 방사성 독성이 높은 사용후핵연료를 취급해야 한다는 조건을 고려하여 소형화된 장치를 개발하여야 하며, 분말이 비산되지 않으면서 최대 회수율을 갖는 장치가 되어야 한다. 따라서, 최종속도 실험에서는 장치 출구에서 분말이 밖으로 비산되지 않는 적정의 유량을 결정하고자 한다. 이를 위해서 UO_2 pellet과 SiO_2 의 이론식을 Stokes 법칙으로 구하여 관계식을 비교하였다. 그리고 아크릴 실험 장치를 이용하여 SiO_2 의 최종속도 측정실험을 하여 이론 최종속도와 비교 검증하였다. U_3O_8 분말이 비산되지 않는 최적공급유량을 예측하기 위하여 SiO_2 와 UO_2 pellet의 밀도비 관계식과 Stokes 법칙의 기울기 관계식[1]을 사용하였으며, U_3O_8 이 비산되지 않는 이론 최적유량의 결과를 검증하고자 실험장치를 U_3O_8 분말과 실제 산화로를 사용하는 Mock-up 시설에서 기존 산화로를 사용하여 확인하였다. 두 분말의 Stokes와 밀도비 식에서 나온 최종 이론 유량 값에 따라 분말 검출유무를 확인하기 위하여 유량에 변수를 주어 1 μm 의 배출필터를 통해 분진 배출 유무 확인과 분석 실험을 수행하였다. 이상의 검증실험을 통하여 U_3O_8 분진이 발생하지 않는 최적공급유량을 확인하였으며, U_3O_8 분말이 비산되지 않는 산화로의 최종속도

측정방법을 범용의 실증용 UO₂ pellet 산화로를 설계 하는데 적용하였다.

II. 본 론

U₃O₈과 SiO₂(실리카 분말)의 최종속도를 측정하기 위하여 Stokes식(식2)과 계산프로그램(그림 2)을 사용하였다. 500 ℃의 U₃O₈ 조건에서와는 달리 SiO₂에 대한 공기 특성을 상온으로 가정하였으며, 그 분말 입도의 크기는 1~120 μm를 사용하였다.

가. UO₂ pellet 분말의 입도에 따른 유량 조절 계산

그림 1은 산화로의 장치 모델이며, 20 kg UO₂ pellet의 완전 산화를 위해 필요한 공기량은 다음과 같다. UO₂ 분자량은 270.07, 따라서, UO₂ 20 kg은 74.055 몰에 해당한다(UO₂ + 1/3O₂ = 1/3 U₃O₈). UO₂ 1 몰의 산화에는 1/3 몰의 산소가 필요하고, 20 kg의 UO₂ 산화에는 24.68 몰의 산소를 요구한다. 이상 기체로 가정하면 1 기압 298 K에서 이상기체 1몰은 22.4 L이고, 산소는 보통 공기 중에 21 %를 차지한다. 따라서, 100/21 × 24.68 × 22.4 L = 2633 L의 공기를 필요로 한다.

분말 비산 방지를 위한 공기 속도 계산 조건은 다음과 같다. 대상 분말의 입도는 1 μm, U₃O₈ 밀도는 8.39 g/cm³, 입자 형상은 구형을 가정하였으며, 상온 공기 특성에서의 공기 밀도를 1.220 kg/m³, 점성 계수 1.8 × 10⁻⁵ kg/m · s 로 하였고, 500 ℃에서 공기 특성 밀도를 0.457 kg/m³, 점성 계수 3.55 × 10⁻⁵ kg/m · s 이고, 1 기압으로 가정하였다.

최종 속도(terminal velocity)는 식(1)과 같으며, 약

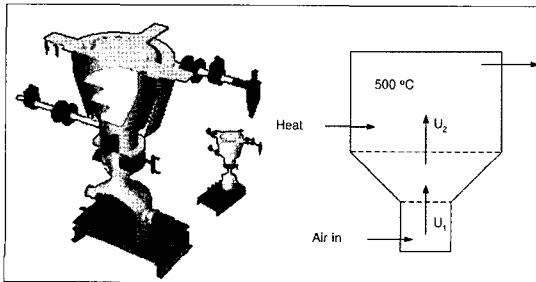


Fig. 1. 3D modeling of voloxidizer.

식으로 계산하면 식(2)와 같다.

$$V_2 = \sqrt{\frac{2W(\rho_p - \rho_a)}{A_p \rho_p C_D \rho_a}} \dots\dots\dots (1)$$

$$V_2 = \frac{gD_p^2 (\rho_p - \rho_a)}{18\mu_a} \dots\dots\dots (2)$$

(V₂: 최종속도, W: 분말의 중량, ρ_p: 밀도, ρ_a: 공기, A_p: 구형입자의 단면적, C_D: 형상저항계수, D_p: 입도, g: 중력가속도, μ_a: 공기 점도)

- ρ_p = 8390 kg/m³
- ρ_a = 0.457 kg/m³
- A_p = $\frac{\pi}{4} (1\mu m)^2 = 0.7854 \times 10^{-12} \text{ m}^2$
- W = m_pg = ρ_pVg = ρ_p $\frac{\pi d^3}{6}$ g = 8390 × π/6 × $\frac{\pi d^3}{6}$ g = 8390 × π/6 × 10⁻¹⁸ = 4392 × 10⁻¹⁸kg

식(3)과 식(4)와 같이 C_D(항력계수) 계산을 위해서는 레이놀드수를 구해야 하며 레이놀드수가 낮은 영역에서는 대략적으로 Stokes의 법칙을 적용한다.

$$C_D = \frac{24}{Re} \dots\dots\dots (3)$$

$$Re = \frac{\rho V_1 D}{\mu} \dots\dots\dots (4)$$

그림 2와 같은 계산절차에 따라 초기속도(V₁)를 가정하고 레이놀드수를 구하여 최종속도(V₂)를 산출하였다. 다음으로 V₁과 V₂를 비교하여 오차범위를 줄이고 그 값이 같아질 때까지 계산 프로그램을 사용하

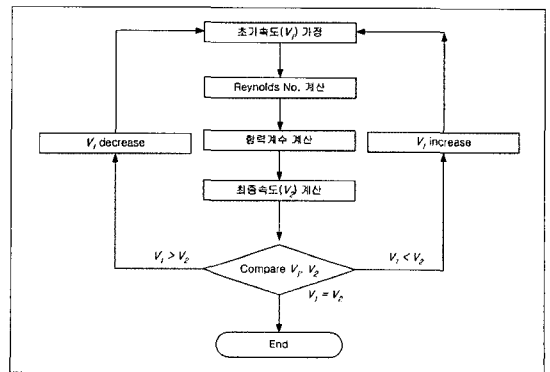


Fig. 2. Diagram for calculating terminal velocity.

였다.

나. Silica 분말의 입도에 따른 유량 조절 계산

최종속도를 계산하기 위한 조건은 다음과 같다. SiO₂ 밀도는 2.2 ~ 2.6 g/cm³ (2.2로 계산)이고 입자 형상을 구형으로 가정하였다. 상온 공기 특성에서 공기밀도 1.220 kg/m³, 점성 계수 1.8 × 10⁻⁵ kg/m · s 이다. SiO₂ 최종속도를 식(1), 식(2), 식(3), 식(4)에 의해 구하는데, 그 결과는 그림 3과 같다. 이론식 식(5)는 SiO₂의 경우이고, 식(6)은 U₃O₈ 경우의 이론 산출 값이다.

$$y_1 = -a_1x_1^2 + b_1x_1 - c_1 \quad \dots\dots (5)$$

$$y_2 = -a_2x_2^2 + b_2x_2 - c_2 \quad \dots\dots (6)$$

SiO₂ 이론값인 식(5) 와 U₃O₈ 이론값인 식(6)에서 이차함수의 계수는 0에 가깝고(a₁≐a₂≐0), 일차함수의 계수는 거의 같은 기울기를 갖는다(b₁≐b₂). 따라서 기울기가 같은 1차 함수로 볼 수 있으며, U₃O₈ 이론값인 식(6)에서 SiO₂ 이론값인 식(5)를 뺀 식이 U₃O₈의 예측 가능한 일반식이 되고, 그것은 식(7)과 같다.

$$\therefore y_u = b_u x_u - (c_2 + (c_1 - c_2)) \quad \dots (7)$$

그림 4는 U₃O₈의 온도별[(a) 400 °C, (b) 500 °C, (c) 600 °C] 입도 분포도를 나타낸다. 여기서 500 °C를 기준으로 할 때 3 μm 이하의 분말은 존재하지 않는다. 따라서 3 μm이 배출되지 않는 입자 크기를 기

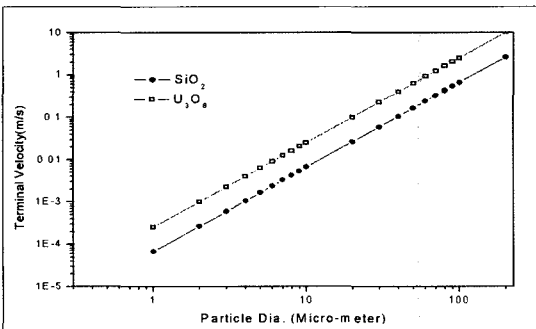


Fig. 3. Theoretical terminal velocity of the U₃O₈ and SiO₂.

준으로 정하여 최종속도 측정실험을 하였으며, 그림 4, 5와 같이 U₃O₈과 SiO₂의 입도 분포도로 2~120 μm의 범위를 선정하여 실험하였다.

다. SiO₂ 최종속도 검증 실험 조건 및 방법

실험시료로 SiO₂ 5 kg을 사용하였다. 식(8)및 식(9)로부터 원통의 수직 장치에서 유동화에 의하여 최초 분말이 흘러넘치는 지점의 값인 TDH(Transport Disengaging Height) 값을 구하고 기존 장치의 크기와 동일한 아크릴 모델을 제작하여(기존 UO₂ pellet 산화로와 동형) 상온에서 유량 변화(5, 10, 15, 20 L/min)를 주어 실험을 하였으며, 16시간마다 시료를 채취하여 분석하였다(그림 6). 그림 7은 최종속도에서 채류 중인 분말입자의 사진이며, 그림 8은 SiO₂의 최종속도 이론식을 검증하기 위한 장치이다. 실험 당 공기의 공급시간을 16시간으로 하여 90 cm³/min, 600 cm³/min, 3 L/min, 9 L/min, 40 L/min별로 시료를 채취하였다.

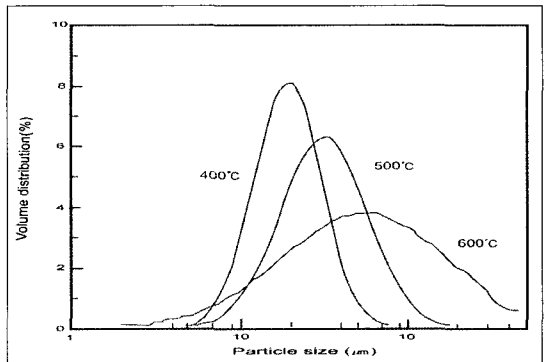


Fig. 4. Temperature-dependent particle size distribution of U₃O₈

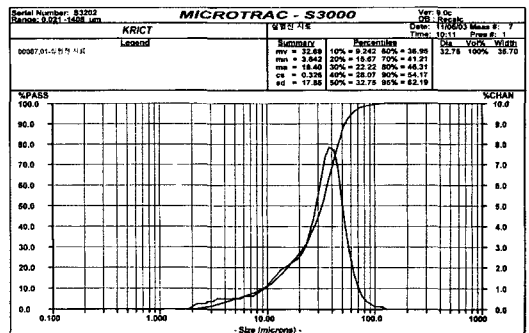


Fig. 5. Particle size distribution of SiO₂

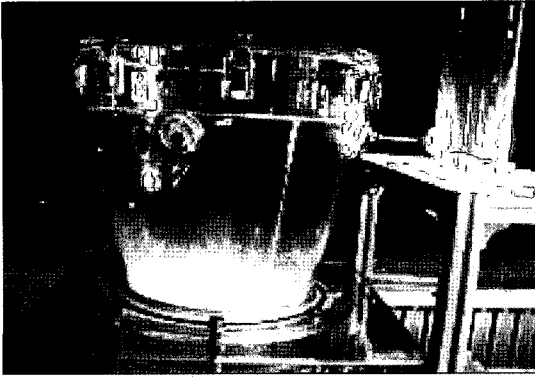


Fig. 6. Experimental device for measuring terminal velocity.



Fig. 7. Particle under the terminal velocity condition

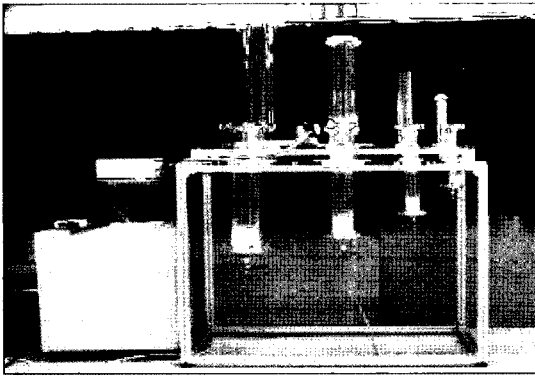


Fig. 8. Particle collecting at the terminal velocity flow rate.

$$Q = A \cdot V, d_t = \sqrt{\frac{4Q}{\pi V}} \quad \dots\dots\dots (8)$$

$$TDH = C \cdot d_t \quad \dots\dots\dots (9)$$

라. 실험 결과

그림 9는 10 L/min의 유량실험 후 SEM 및 SiO₂의 입도 분포도를 나타낸 것이다. 입도분석기 (MICROTRAC-S3000)로 측정하였는데 그 결과, 얻어진 평균 입도 분포는 9.6 μm이다. 공급 유량별 실험 결과에서 각 L/min 경우의 평균 입자 크기를 측정 분석하여 정리하였다.

그림 10은 최종속도에서 유량별로 측정한 평균 입도 크기를 나타낸 것이다. 여기서 구하고자 하는 최종 값은 U₃O₈이 장치 밖으로 배출되지 않는 최적 유량과 이때의 장치 가열로의 내경 크기가 된다.

그림 10에서는 SiO₂의 이론값과 실험값이 비슷한 경향을 보이고 있다. 이론값이 구형입자에 대한 형상 계수 값의 차로 인하여 실험값 보다 위에 있어야 하

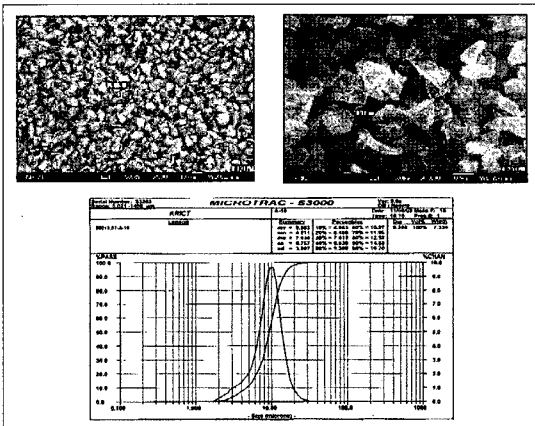


Fig. 9. SEM morphology and particle size distribution (SiO₂) when feeding flow rate is 10 and 20 L/min, respectively.

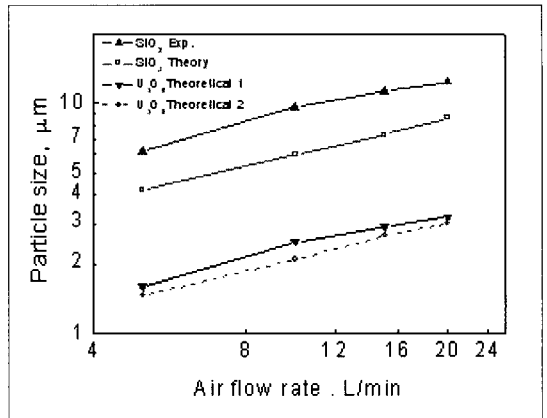


Fig. 10. Experimental results of terminal velocity at the flow rate.

나, 평균 1.5 μm 정도 오차를 보이면서 실험값보다 아래에 있다. 그 이유는 공급유량이 공급될 때 일정한 분포를 가지고 공급이 되면 전자의 경우가 되며, 장치 내에 쌓인 분말 두께의 불균일한 분포로 공급압력

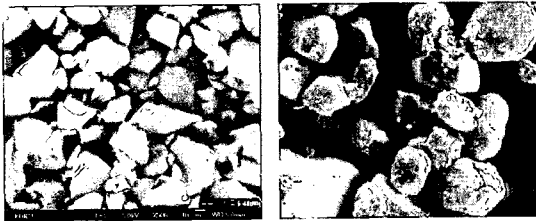


Fig. 11. Particle shape of SiO₂ and U₃O₈.

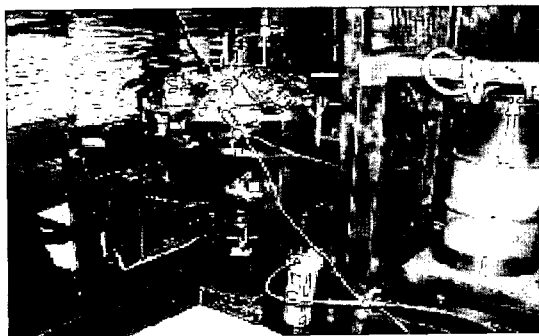


Fig. 12. Voloxidizer for verifying filtration of the U₃O₈.

이 분말의 두께 층을 얇은 쪽으로 솟아오르게 함에 따라 유속이 증가하기 때문이다. 그림 10에서 U₃O₈의 값은 식(1), 식(2), 및 식(7)에서 나온 이론값(Theoretical 2)이고, 식(10) 및 식(11)에 의하여 SiO₂와 U₃O₈의 밀도비로 계산한 결과(Theoretical 1)이다.

형상 저항 계수(f)는 그림 11과 같이 U₃O₈ 형상과 SiO₂ 형상은 유사하나, U₃O₈이 둥그스름한 형상이므로 저항을 적게 받는다. 따라서 입자의 형상이 구형일 때 형상 저항 계수(f)를 레이놀즈수와 형상저항계수 관계식[2] 표에 의하여 1.2로 정하였으며, 밀도 비에 의한 U₃O₈ 입도의 예측 식은 식(10) 및 식(11)과 같다.

$$f \cdot \frac{\rho_2}{\rho_p} = \frac{S_2}{S_p} \dots\dots\dots (10)$$

(P_p: SiO₂ 밀도, P₂: U₃O₈ 밀도, S_p: SiO₂ 입도, S₂: U₃O₈ 입도)

$$S_2 = S_p \times f \frac{\rho_2}{\rho_s} \dots\dots\dots (11)$$

실증용 UO₂ pellet 산화로의 설계는 다음과 같다. 식(12)과 식(13)은 SiO₂와 U₃O₈의 최종속도와 산화로 내경 크기에 따른 유량 값이다.

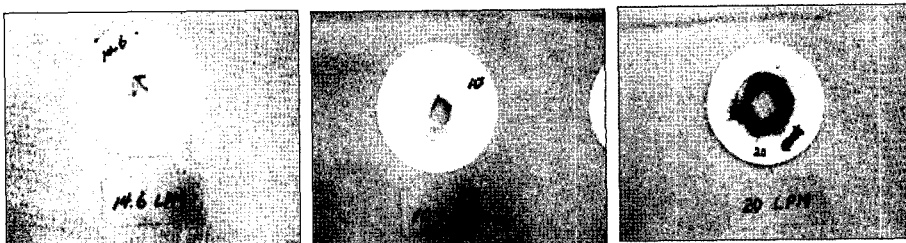


Fig. 13. Experimental results of U₃O₈ in output filter.

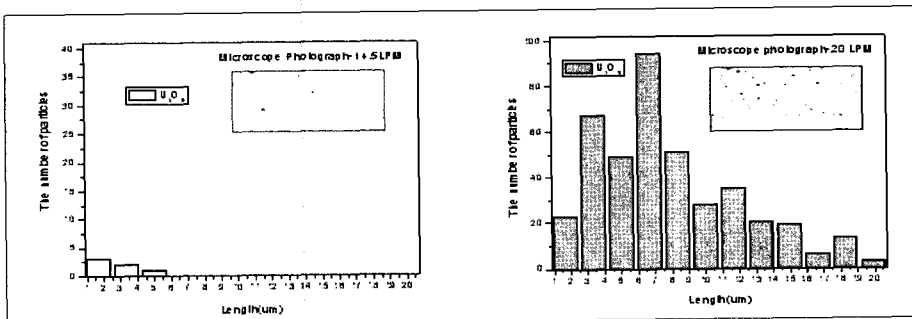


Fig. 14. Results of U₃O₈ in output filter using electron microscope.

$$Q_1 = \frac{\pi}{4} d_1^2 \cdot v_1 \quad \dots\dots\dots (12)$$

$$Q_2 = \frac{\pi}{4} d_2^2 \cdot v_2 \quad \dots\dots\dots (13)$$

이때 같은 유량일 때 U_3O_8 의 장치 내경을 식(14) 및 식(15)에 의해서 구한다. 따라서 개선될 장치의 내경 (d_2)을 350 mm로 결정한다. $Q_1=Q_2=Q$ 라고 가정하면

$$d_1^2 \cdot v_1 = d_2^2 \cdot v_2 \quad \dots\dots\dots (14)$$

$$\therefore d_2 = d_1 \cdot \sqrt{\frac{v_1}{v_2}} \quad \dots\dots\dots (15)$$

여기서, (ρ_p : SiO_2 밀도, ρ_f : U_3O_8 밀도, S_p : SiO_2 입자크기, S_f : U_3O_8 입자크기,

Q_1 : SiO_2 공급유량, Q_2 : U_3O_8 공급유량, d_1 : 기존 장치 산화로 내경, d_2 : 개선장치 산화로 내경, V_1 : SiO_2 최종속도, V_2 : U_3O_8 최종속도)

그림 12는 U_3O_8 분말검출 유무를 위한 산화로 실험 장치이며, 그림 13 및 그림 14는 최종속도에서 입자의 배출여부를 관독한 사진과 현미경 분석결과이다. Stokes식인 20 L/min 인 경우 분말을 검출하였고 평균 7 μm 의 입도분포를 갖는다. 밀도비식의 14.5 L/min인 경우에 극미량의 분말을 검출하였다. 그러나 10 L/min 인 경우에 분말을 전혀 발견하지 못하였다. 따라서 3 μm 의 U_3O_8 이 배출되지 않는 유량을 밀도비식의 14.5 L/min 이하로 결정하였다.

III. 결 론

사용후 핵연료 차세대관리공정 장치들 중에서 급속전환로 반응효율을 증가시키기 위해서 균질화된 U_3O_8 분말을 공급하는 실증용 UO_2 pellet 산화로 개발이 필요하다. 실증용 UO_2 pellet 산화로의 설계와 최적공급 유량을 결정하기 위하여 U_3O_8 및 SiO_2 의 Stokes식과 밀도비 이론관계식을 제시하였다.

최종속도 구성도 계산절차에 따라 계산 프로그램을 사용한 결과, U_3O_8 의 이론 최종속도 값의 기울기는 SiO_2 의 이론 최종속도 기울기 값과 같은 1차 함수로서 상수 값의 차이로만 예측 할 수 있음을 알 수 있

었다. SiO_2 의 최종속도 이론식을 검증한 결과 SiO_2 의 이론값과 실험값이 비슷한 경향을 보이고 있으며, 이론값이 1.5 μm 정도의 오차를 보이면서 실험값보다 낮다. 그 이유는 분말 두께의 불균일한 분포에 따라 얇은 쪽에서 유속이 증가하기 때문이다. 두 물질의 Stokes 법칙과 밀도비 관계식에서 SiO_2 의 최종속도 이론식에 대한 검증실험 결과와 U_3O_8 의 예측 가능한 일반식을 이용하여 U_3O_8 분말이 비산하지 않는 UO_2 pellet 산화로의 이론 최종속도 측정 값을 산출하였다. 그 결과, 3 μm 이하의 U_3O_8 이 배출되지 않는 유량으로 밀도비 식에서는 14.5 L/min, Stokes식의 결과는 20 L/min 이었다. U_3O_8 의 공급유량이 20 L/min, 14.5 L/min일 때 최적유량을 결정하기 위해 공기유량에 따라 U_3O_8 과 기존의 실제 산화장치를 가지고 Mock-up 시설에서 검증실험을 하였다. 그 결과 Stokes식의 20 L/min에서 평균 입도 7 μm 정도의 분말의 배출을 확인하였고, 밀도비식 결과인 14.5 L/min에서는 극미량을 검출하였으며, 10 L/min 이하에서는 전혀 배출하지 않았다. 따라서 U_3O_8 이 비산하지 않는 최적유량으로는 밀도비식의 14 L/min 이하가 바람직함을 알 수 있다. 본 실험을 통하여 실증용 UO_2 pellet 산화로의 내경을 350 mm로 결정하였다. 그리고 실증용 UO_2 pellet 산화로를 설계하기 위한 최종속도의 결정방법을 제안하였으며, 설계 기본요건과 최적공급유량을 도출하였다.

참 고 문 헌

- [1] K. Adachi, S. Kiriya, and N. Yoshioka, "The Behavior a Swarm of Particles Moving in a Viscous Fluid", Chem. Eng. Sci., 33, 115(1978).
- [2] A. M. Ayoub, and G. E. Klinzing, "Effect of Particle Size and Shape on Settling Using an Integral Approach", Powder Tech., 35, 63(1983).
- [3] G. Richard Eisler, and G. Hull, "Maximum Terminal Velocity Turns at Constant Altitude", AIAA Journal of Guidance & Control, 61(1-11)(1987).
- [4] P.N. Rowe, and G.N. Henwood, Trans. Inst.

Chem. Eng. , 39, 43(1961).

- [5] U. Gunzo, K. Masafumi and T. Takesh, "Development of Voloxidation Process for tritium Control in Reprocessing.", JAERI-M, 91-199, November(1991).
- [6] G. Bozzano, and M. Dente, "Shape and Terminal Velocity of Single Bubble Motion: a Novel Approach", "Computers & Chemical Engineering", 25(4-6), 571-576(2001).
- [7] R. P. Chhabra, S. Agarwal, and K. Chaudhary, "A Note on Wall Effect on the Terminal Falling Velocity of a Sphere in Quiescent Newtonian Media in Cylindrical Tubes" , Powder Technology, 129(1-3), 53-58(2003).
- [8] Vassilios, and C. Kelessidis, "An Explicit Equation for the Terminal Velocity of Solid Spheres Falling in Pseudoplastic Liquids", Chemical Engineering Science, 59(21), 4437-4447 (2004).
- [9] M. Krzan, K. Lunkenheimer, and K. Malysa, "On the Influence of the Surfactant's Polar Group on the Local and Terminal Velocities of Bubbles Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects", In Press, Corrected Proof, Available online, 22 September(2004).
- [10] S.S. Alves, S.P. Orvalho, and J.M.T. Vasconcelos, "Effect of Bubble Contamination on Rise Velocity and Mass Transfer", Chemical Engineering Science, In Press, Corrected Proof, Available online, 15 September(2004).