

< 논문 >

대용량 우라늄디옥사이드 펠릿 산화를 위한 공기산화로의 설계 고려사항에 대한 연구

김영환† · 정재후* · 이효직* · 박병석* · 윤지섭*
(2006년 9월 8일 접수, 2007년 3월 14일 심사완료)

A Study on the Design Considerations of Vol-Oxidizer for High-Capacity Uranium Dioxide Pellets

Young-Hwan KIM, Jae-Hoo JUNG, Hyo Jik LEE, Byung-Suk PARK and Ji-Sup YOON

Key Words : Oxidation(산화), Uranium Dioxide (우라늄디옥사이드), Pellet(펠릿), U_3O_8 (팔산화삼우라늄), Vol- Oxidizer(공기산화로), Exothermic Reaction(발열반응), Terminal Velocity(비산방지 유입속도)

Abstract

This study deals with the design and implementation results for a high-capacity vol-oxidizer that can convert Uranium Dioxide pellets to U_3O_8 powder for up to several tens of kg HM/batch. We developed two versions of the 1st vol-oxidizer and the 2nd vol-oxidizer. Through an experiment with the 1st vol-oxidizer, we deduced some problems concerning the design considerations such as the recovery rate of U_3O_8 , the oxidation time of the Uranium Dioxide pellets, the exothermic reaction, and the powder dispersion. From the analyses of the drawbacks of the 1st vol-oxidizer, we devised some novel items such as a folding type mesh, vibrators, and mixing blades. Also, we used the Stokes and Density ratio Eq. to determine the most reasonable flux for preventing a powder dispersion. Compared with the results of the 1st vol-oxidizer, we showed that both the permeability of the U_3O_8 powders and the oxidation rate of the Uranium Dioxide pellets of the 2nd vol-oxidizer were remarkably increased, and the temperature of the reactor was controlled well in spite of an exothermic reaction. Also, the powder was not entirely dispersed through the outlet of the vol-oxidizer. The experimental results of this work can help in the design of a novel and efficient vol-oxidizer with a higher capacity.

기호설명

V_1 : 초기속도
 V_2 : 스토크스식의 비산방지를 위한 유입속도
 W : 분말무게
 ρ_p : 입자밀도
 ρ_a : 공기밀도
 A_p : 구형입자의 단면적
 C_D : 형상항력계수
 D_p : 입자직경
 G : 중력가속도

μ_a : 공기점성
 V_S : 실리카의 비산방지를 위한 유입속도
 V_U : 팔산화삼우라늄의 비산방지를 위한 유입속도
 D_S : 실리카 입자직경
 D_U : 팔산화삼우라늄 입자직경
 CD_S : 실리카 항력계수
 CD_U : 팔산화삼우라늄 항력계수
 F : 항력계수비
 ρ_S : 실리카 밀도
 ρ_U : 팔산화삼우라늄 밀도
 S_S : 실리카 평균입도분포
 S_U : 팔산화삼우라늄 평균입도분포
 Q_S : 실리카 공급유량
 Q_U : 팔산화삼우라늄 공급유량
 D_S : 실리카 실험장치 내경
 D_U : 새로운 장치 내경

† 책임저자, 회원, 한국원자력연구원
E-mail : yhkim3@kaeri.re.kr
TEL : (042)868-2559 FAX : (042)868-2857

* 한국원자력연구원

V_S : 실리카의 유속
 V_U : 팔산화삼우라늄의 유속

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

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

본 논문에서는 수십 kg의 우라늄디옥사이드 펠릿(20 kgHM)을 산화할 경우, 소용량인 수 kg의 우라늄 디옥사이드 펠릿(1~5 kg HM)의 산화특성에서 언급되지 않았던 회수율, 산화시간, 발열반응, 분말의 비산등이 문제가 될 것이라고 예측하였다. 이를 위하여 문제점에 대해서 1차 실험장치를 제작하여 수십 kg의 우라늄디옥사이드 펠릿이 산화될 때 산화 및 분말 특성을 알아보았으며, 분말의 비산방지를 위한 최적의 유량을 알아 보기 위하여

실리카 유량실험을 수행하였다. 또한 문제점이 반영된 새로운 공기산화로를 제작하여, 검증실험을 수행하였다. 그러나 한국에서는 실제의 사용후핵연료를 사용할 수 없기 때문에 사용전 우라늄디옥사이드 펠릿을 사용하였으며, 공기산화로가 반응 동안에 생성하는 휘발성 가스처리 실험은 본 연구에 포함되지 않았다.

Fig. 1은 한국에 있는 차세대관리공정의 레이아웃을 보여준다. 슬리핑 장치에서 탈피복된 우라늄 디옥사이드 펠릿은 공기산화로로 운반되고, 500 °C 온도에서 공기를 공급하여 20~60 μm의 범위의 균질한 팔산화삼우라늄을 만든다.⁽⁷⁾ 그리고 다음공정의 금속전환장치로 이동된다.

Fig. 2는 3단 메시를 가진 1차 실험장치의 구조이다. 제시된 4가지의 특성을 알아보기 위하여 수직형 실험용 장치(직경 850 x 높이 1500 mm)를 개념장치로 제작하여 목업(mock-up) 시설에서 예측되는 문제점에 대한 실험을 수행하였다.

이 장치의 내부 구조는 크기가 서로 다른 3개의 메시가 수직으로 배열되어 있다. 하부에서는 산소농도를 조절할 수 있는 공기가 공급되며, 상부프렌지 부분에 공기 배출구가 있다. 반응종료 후, 장치 중간부분의 분말 배출 밸브를 열면 분말은 3개의 메시를 통과해서 하부 분말용기로 모이게 되며, 다음공정으로 이송된다.⁽⁸⁾

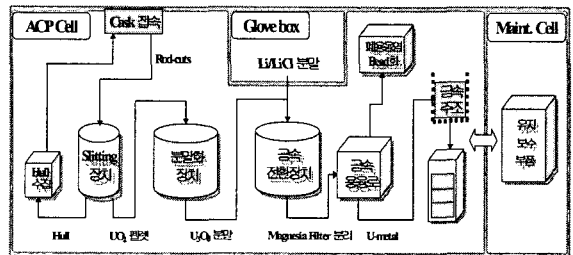


Fig. 1 Process Cell Equipment Layout in ACP(Advanced Spent Fuel Conditioning Process)

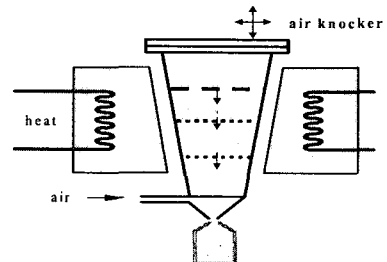


Fig. 2 Structures of the experimental device

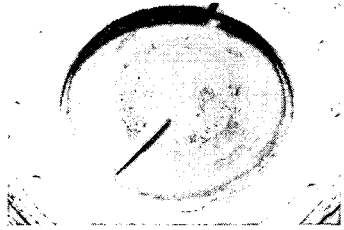


Fig. 3 Permeability test of uranium oxide powder on the mesh in the experimental device

본 논문의 구조는 3 단계로 구성되어 있다. 1 단계로 실험용 장치에서 수십 kg의 우라늄디옥사이드 펠릿이 산화될 때 발생하는 문제점, 즉 실험에 의하여 회수율, 산화시간, 발열반응 및 분말의 비산특성 결과를 수집하였다. 2 단계에서 실험결과를 분석하고, 대용량 공기산화로의 제작을 위하여 접이형 메시(folding mesh), 바이브레이터, 블레이드를 고안 및 설계를 하였으며, 비산방지를 위하여 최적 유량을 결정하였다. 3 단계에서는 설계시 상고려사항들을 반영하였으며, 새로 제작된 공기산화로를 사용하여 검증실험을 수행하였다.

2. 1 차 공기산화로의 실험 및 결과

2.1 팔산화삼우라늄분말의 회수율

1 차 실험장치에서 3 단메시를 사용한 이유는 공기의 접촉면적을 최대한으로 산화효율을 높이기 위하여 설치되었다. 1 차 실험장치의 내부는 직경 4 mm의 구멍들을 갖는 상부메시, 직경 2 mm 구멍들을 갖는 중간메시, 그리고 100 μm 구멍들을 갖는 하부메시로 구성되어 있다. 기본원리는 일정량의 팔산화삼우라늄을 상부메시위에 올려 놓는다. 산화가 종료되면 1 차 실험장치는 에어노커의 충격에 의하여 흔들린다. 이때 상부메시의 구멍 크기보다 작은 입자가 통과되어 중간메시에 도착한다. 계속해서 1 차 실험장치에 충격을 주면, 중간메시구멍들보다 작은 입자는 중간메시와 하부메시를 통과해서 분말용기에 수집된다.

Fig. 3은 팔산화삼우라늄의 분말투과 시험사진이다. 분말투과정도는 1, 5, 20 kg 등의 팔산화삼우라늄을 차례로 상부메시에 올려 놓고 충격변화를 주면서 관찰하였다. 에어노커(air knocker, model : YAK-4D)의 충격력은 2.15 kg/(m/s), 피스톤의 왕복수는 6~8 time/min 까지 변화를 주었다. 그 결과, 팔산화삼우라늄량의 증가에 따라 회수율은 감소되

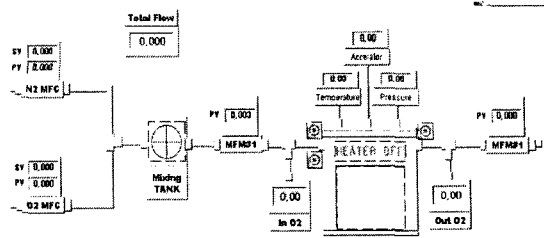


Fig. 4 Schematics of the experimental system for oxidation

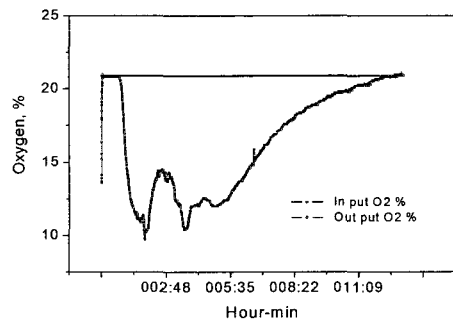


Fig. 5 Oxidation time of the experimental device

었다. 그 이유는 장치내부에 있는 수분에 의해서 분말이 엉기고, 분말량의 증가에 따라 작은 메시 구멍에 많은 분말량이 통과하려고 하기 때문에 메시구멍에서 분말의 매워짐(packung)현상이 증가하였기 때문이다. 따라서 상부메시 아래로 분말이 1 kg의 90%, 5 kg의 50%, 그리고 20 kg의 30%만 통과되었다.

2.2 대용량 우라늄디옥사이드 펠릿의 산화시간

Fig. 4는 대용량 우라늄디옥사이드 펠릿의 산화시간을 측정하기 위해서 제작된 산소농도 측정시스템이다. Fig. 4의 중앙 우측 하단에 있는 큰 사각형은 1 차 실험용 장치이다. 산소와 질소의 혼합 가스는 각각 40 L의 압력 볼베에 의해서 1 차 실험용장치 안으로 공급된다. 산소와 질소의 혼합은 산소유량조절기와 질소 유량조절기를 사용한다. 또한, 혼합가스의 산소농도는 산소 센서에 의해서 측정된다. 투입된 우라늄디옥사이드 펠릿이 500 °C에서 반응하면 실험용 장치 내부에 있는 산소농도가 감소된다. 이때 시간의 흐름에 따라 입력 산소농도값과 감소된 산소농도 값의 차는 Fig. 5와 같이 산화시간의 측정값이 된다.

Fig. 5는 산소측정시스템과 1 차 실험용 장치를

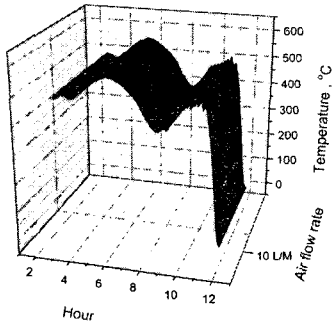


Fig. 6 Exothermic reaction of Uranium dioxide pellets

이용하여 측정된 산화시간의 결과이다. 20 kgHM/batch 용량의 우라늄디옥사이드 펠릿은 500 °C에서 21 %의 산소농도를 가진 혼합가스와 반응한다. 이때 이론 반응유량은 10 l/M 으로 공급되었다. 그 결과 우라늄디옥사이드 펠릿 20 kg HM/batch 가 산화되기 위하여 13 시간 소요되었다.

2.3 대용량 우라늄디옥사이드 펠릿의 발열반응

Fig. 6 은 20 kg 의 우라늄디옥사이드 펠릿이 실험용 장치에 투입된 후, 반응온도가 시간의 흐름에 따라 변화되는 것을 보여준다. 온도센서(350 mm, k-type)는 실험용 우라늄디옥사이드 펠릿 반응영역의 중앙에 설치되었다. 그러나 온도 컨트롤러의 셋팅 값이 500 °C일지라도 온도는 400 °C부터 560 °C까지 불규칙적으로 변화된다. Fig. 6 에서 보는 바와 같이 산화반응이 5 시간 경과되면서 560 °C 까지 상승하는 이유는 20 kg 의 대용량 우라늄 디옥사이드 펠릿이 산화되면서 발열반응으로 인한 온도상승이 가속화되었기 때문이다. 산화반응이 5 시간 경과 후, 온도가 500 °C 이하로 내려가는 것은 상부메시 위에 쌓였던 대용량의 우라늄 디옥사이드 펠릿이 반응중에 자중에 의해서 무너지고, 산소와의 접촉이 중단됨과 동시에 온도센서의 매몰로 인한 것으로 사료된다. 또한 8 시간 이후 온도가 500 °C까지 상승한 이유는 20 kg 의 우라늄 디옥사이드 펠릿의 발열반응이 거의 종료되고, 500 °C로 세팅된 온도 컨트롤러에 의하여 발생하는 전기 가열로의 외벽 열에 영향을 받은 것으로 판단한다.

2.4 팔산화삼우라늄 분말의 비산방지를 위한 이론 유입유량

2.4.1 실험방법

팔산화삼우라늄의 방사선 독성 때문에 팔산화삼

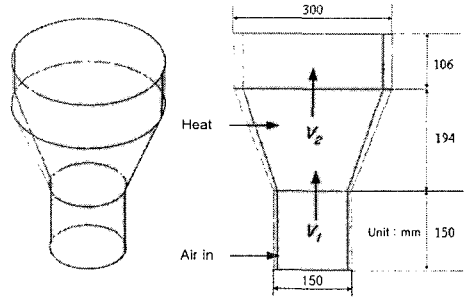


Fig. 7 3D modeling of the experimental device

우라늄을 이용한 비산방지 이론 유입유량 실험은 직접 수행될 수 없었다. 그래서 팔산화삼우라늄의 이론 유입유량은 실리카를 이용해서 예측되었다. 팔산화삼우라늄의 이론 유입유량을 결정하기 위해서 실험방법은 다음과 같다.

- 1 단계로, 팔산화삼우라늄과 실리카의 이론 유입은 스토커스식에 의해서 계산되었다.
- 2 단계로, 스토커스식을 확인하기 위하여, 실리카의 이론 유입유량은 실험에 의해서 검증되었다.
- 3 단계로, 팔산화삼우라늄의 이론 유입유량은 실리카와 팔산화삼우라늄 관계를 갖는 밀도비식에 의해서 계산되었다.

2.4.2 비산방지를 위한 유입속도

팔산화우라늄과 실리카의 비산방지를 위한 유입속도를 계산하기 위하여 스토커스식을 사용하였다.⁽⁹⁾ 공기 온도는 상온이며, 분말 입도의 크기는 1~120 μm 범위를 사용하였다.

Fig. 7 은 공기산화로의 모델이며, 20 kg 우라늄 디옥사이드 펠릿의 산화를 위해 필요한 이론 공기량은 2633 L이다. 분말 비산 방지를 위한 공기 속도의 계산조건은 다음과 같다. 대상 분말의 입도 분포는 1~100 μm, 팔산화삼우라늄밀도는 8.39 g/cm³, 입자 형상은 구형으로 가정하였다. 상온의 공기 밀도는 1.220 kg/m³, 점성 계수는 1.8 x 10⁻⁵ kg/m·s 로 하였고, 500 °C에서 공기 밀도는 0.457 kg/m³, 점성 계수는 3.55 x 10⁻⁵ kg/m·s 이고, 1기압으로 가정하였다.

비산방지를 위한 유입속도는 식 (1)과 같으며, 약식으로 계산하면 식 (2)와 같다.

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

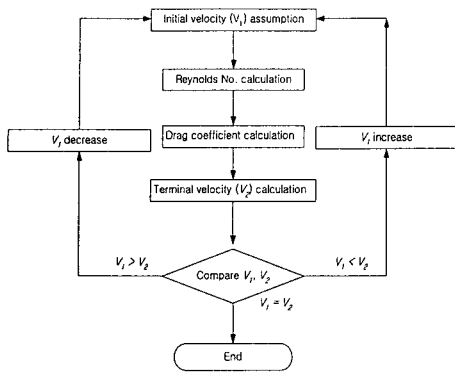


Fig. 8 Diagram for calculating of terminal velocity

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

(V_1 : 초기속도, V_2 : 비산방지를 위한 유입속도, W : 분말의 중량, ρ_p : 입자밀도, ρ_a : 공기밀도, A_p : 구형입자의 단면적, C_D : 형상저항계수, D_p : 입자직경, g : 중력가속도, μ_a : 공기 점도, V_g : 구형체적)

$$(A_p = 0.7854 \times 10^{-12} m^2, W = \rho_p V_g = 4392 \times 10^{-18} kg)$$

식 (3)과 식 (4)와 같이, 항력계수는 레이놀드수에 의해 구해지며, 레이놀드수가 낮은 영역에서 대략적으로 스토크스식이 적용된다.

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

$$Re = \frac{\rho V D}{\mu} \quad (4)$$

Fig. 8 에서 초기속도(V_1)는 임의의 값으로 가정되었고, 비산방지를 위한 유입속도(V_2)는 레이놀드수를 적용하여 산출되었다. 다음으로 계산 프로그램은 V_1 과 V_2 를 비교하면서 오차범위를 줄이고, 그 값이 같아질 때까지 이터레이션(iteration)되었다. 실리카의 비산방지를 위한 유입속도의 계산조건은 다음과 같다.

실리카 분말의 입도분포는 1~100 μm , 실리카 밀도는 2.2~2.6 g/cm^3 이고, 입자 형상은 구형으로 가정하였다. 상온에서 공기밀도는 1.220 kg/m^3 , 점성계수는 1.8 $\times 10^{-3} kg/m \cdot s$ 이다. 실리카 비산방지를

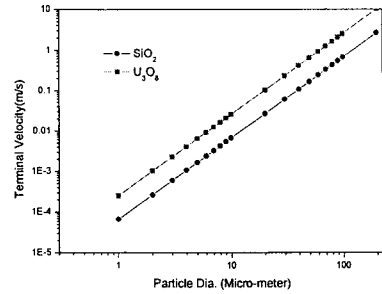


Fig. 9 Theoretical terminal velocity of the uranium oxide and silica

위한 유입속도는 식 (1), (2), (3), (4)에 의해 구해진다. 결과는 Fig. 9 에서 보여준다. 실리카의 비산방지를 위한 유입속도는 식 (5)이고, 팔산화삼우라늄의 비산방지를 위한 유입속도는 식 (6)이다.

$$\log V_s = a \log D_s + b_s \quad (5)$$

$$\log V_U = a \log D_U + b_U \quad (6)$$

식 (5)와 식 (6)으로부터 식 (7)은 팔산화우라늄의 비산방지를 위한 유입속도이고, 실리카의 비산방지를 위한 유입속도에 의해서 예측 가능한 일반식이 된다.

$$\begin{aligned} \log V_U &= \log V_s - b_s + b_U \\ &= \log V_s + (b_U - b_s) \end{aligned} \quad (7)$$

2.4.3 팔산화삼우라늄분말의 비산방지 이론유량

Fig. 10(a)는 실리카 유량의 검증실험을 위한 실험장치와 동형인 아크릴 장치이다. 20 kg 의 실리카 분말이 사용되었다. 공기는 아크릴 장치 하부에서 유량 별로(5, 10, 15, 20 l/min) 각각 16 시간 동안 공급되었다. Fig. 10(b)는 일정한 유량이 공급될 때 아크릴 장치 출구로 실리카 분말이 넘쳐 흐르는 장면을 보여준다. 아크릴 장치 입구로 공기가 16 시간 공급되는 동안, 아크릴 장치 출구에서 흘러나온 실리카 분말은 Fig. 10(b)의 아크릴 칼럼으로 수집된 후, 채취되었다. 실리카 sample 의 평균입도 분포 크기는 Particle 분석기(MICROTRAC-S300)에 의하여 분석되었다. 실리카 유량의 검증실험 결과는 Fig. 12 와 같다.

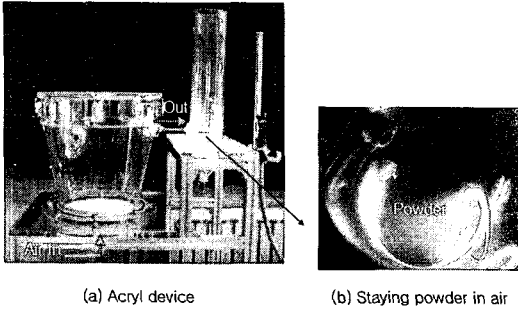


Fig. 10 Experimental scene for verification experiment of silica

Fig. 12 는 유속이 비산방지를 위한 유입속도일 때 유량의 변화에 따라 비산된 평균 분말입도이다. 실리카의 이론결과(스토커스식)와 실험결과가 비슷한 경향을 보이고 있다. 그러나 평균 입도분포를 살펴보면, 실리카의 이론값이 실험 결과값보다 1.5 μm 차이로 아래에 있다. 그 이유는 실리카의 실험에서 장치 내에 쌓인 분말 두께층이 불균일한 분포로 있고, 얇은 분말 두께층에서 유속이 증가하기 때문이다.

Fig. 11 과 같이 팔산화삼우라늄과 실리카 입자의 형상은 유사하다. 그러나, 구체적으로 관찰하면 팔산화삼우라늄의 형상이 구형과 유사하기 때문에 팔산화삼우라늄의 항력계수(CD_U)는 0.35 이고, 탄환형상인 실리카의 항력계수(CD_S)는 0.29 이다.¹⁰⁾ 그러나, 실제형상을 고려한 실리카와 팔산화 우라늄 형상에 의한 항력 계수비($f=1.2$)를 고려해야 하지만 실리카와의 팔산화 우라늄의 형상을 구형으로 가정했을 때와 마찬가지로 동일한 조건인 구형($f=1$)으로 하여 고려하였다.

식 (9)는 실리카와 팔산화삼우라늄의 밀도비에 의한 관계식이고, 식 (10)은 유량에 따라 실리카의 평균 입도(S_S)를 알고 있을 때, 팔산화삼우라늄의 평균입도(S_U)를 예측하는 식이다.

$$f = \frac{CD_S}{CD_U} \quad (8)$$

$$\frac{\rho_U}{\rho_S} = f \frac{S_U}{S_S} \quad (9)$$

$$\therefore S_U = S_S \times \frac{1}{f} * \frac{\rho_U}{\rho_S} \quad (10)$$

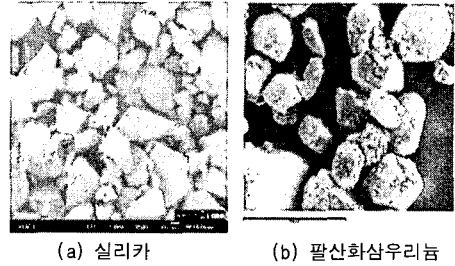


Fig. 11 Particle shapes of silica and uranium oxide

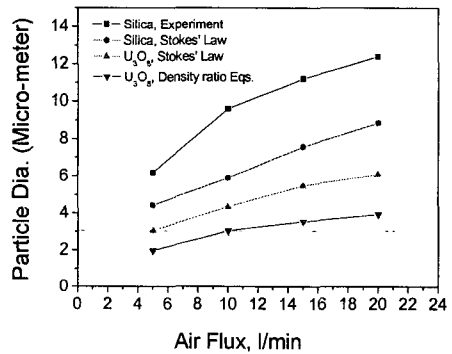


Fig. 12 Experimental results of terminal velocity with various air flow rate

(CD_S : 실리카 항력계수, CD_U : 팔산화삼우라늄 항력계수, f : 항력계수비, ρ_S : 실리카 밀도, ρ_U : 팔산화삼우라늄 밀도, S_S : 실리카 평균 입도, S_U : 팔산화삼우라늄 평균 입도).

Fig. 12 에서 스토커스식에 의한 팔산화삼우라늄의 결과는 식 (2)와 식 (7)을 이용하여 계산된 값이고, 밀도비식에 의한 팔산화삼우라늄의 결과는 식 (9) 및 식 (10)을 이용하여 계산한 값이다.

Fig. 13 은 팔산화삼우라늄의 입도 분포도이며, 500 $^{\circ}\text{C}$ 에서 입도 범위는 5~120 μm 이다. 500 $^{\circ}\text{C}$ 를 기준으로 할 때 3 μm 이하의 분말은 존재하지 않는다. 여기서 구하고자 하는 최종 값은 팔산화삼우라늄이 장치 밖으로 배출되지 않는 최적의 유입 유량이 된다.

따라서, 3 μm 이상의 팔산화삼우라늄분말에서 비산되지 않은 이론 유입 유량은 Fig. 12 에서와 같이 스토커스식에서 5 l/m 이며, 밀도비 식에서 10 l/m 이다.

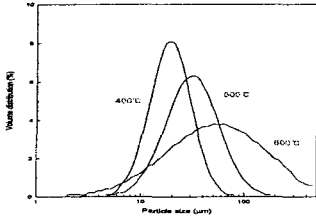


Fig. 13 Temperature-dependent particle size distribution of uranium oxide

3. 개량된 공기산화로 개발

3.1 접이식 메시

Fig. 14 는 제작된 공기산화로 장치의 개선사항들이다. 개선사항들은 메시, 바이브레이터, 블레이드 및 분말방지를 위한 제작된 장치의 내경크기를 구하는 것들이 포함된다.

1 차 실험장치의 실험에서, 팔산화삼우라늄의 회수율은 장치내부의 습기에 의해서 서로 뭉치는 특성 때문에 떨어진다. 따라서, 이 문제가 극복되고, 분말이 상부 메시를 잘 통과되도록 설계되어야 하며, 우라늄디옥사이드 펠릿이 상부 메시위에 놓여졌을 때 그것이 산소와 접촉면적을 최대로 하기 위한 메시구조로 되어야 한다. 이를 위하여 Fig. 14(a)와 같이 접이형 메시로 설계하였다. 이구조의 특성은 접이형메시상부에 있는 공기실린더가 상부로 작동되면 메시가 하부로 접어져 경사지게 되며 이 경사면으로 분말이 흘러내리도록 설계되었다.

Fig. 14(a)는 공기실린더가 상부로 올라졌을 때, 접이식 메시가 아래로 접혀진 모습을 보여준다. 이때 접이식 메시는 분말이 메시 아래로 잘 내려갈 수 있도록 수평에서 아래로 60 도까지 내려가도록 되어 있다. 즉, 메시구멍을 통과하지 못하고 뭉쳐진 분말들은 1 차적으로 혼합브레이드에 의해서 분산되고 미세화된 분말들은 접혀진 60 도의 메시 경사면을 따라 중력에 의해서 아래방향으로 분말이 흘러내리도록 하는 구조이다. 여기서 60 도의 경사각은 메시 경사면에 대한 분말이 흘러내리는 정도를 알기 위하여 분말유동실험으로 얻은 최적의 값이다. 접이식 메시의 메커니즘은 Fig. 16 에서 보여주며, 원리는 다음과 같다.

공기실린더가 상부로 30 cm 행정까지 올라지면 축은 상부플랜지 위에 있는 메카널갈 쉘과 베어링에 의하여 안내된다.⁽¹¹⁾ 동시에 우산살의 원리처럼

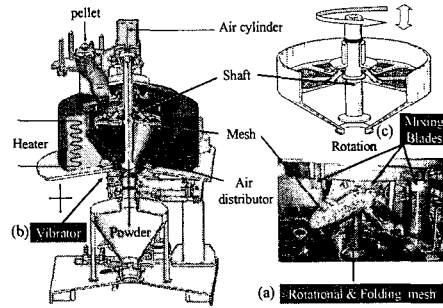


Fig. 14 Improvement items of manufactured vol-oxidizer

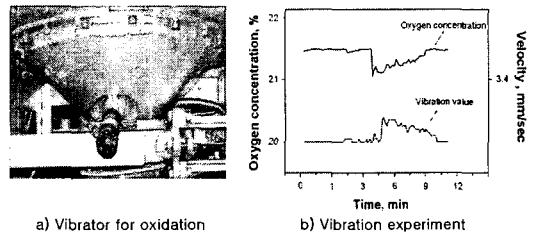


Fig. 15 Oxidation experiment of small quantity by vibration of vibrator

링크에 의해 2 개의 반달형 접이식 메시는 아래방향으로 접힌다. 이때 공기 디스트리뷰터에 있는 분말출구는 축에 의해 열리게 되며, 분말은 아래에 있는 분말용기로 이송된다. 다시 공기실린더를 하부로 30 cm 행정까지 내려지면 분말출구는 축에 의해 막히게 되고, 접이식 메시는 수평상태가 된다.

3.2 고성능 바이브레이터

Fig. 15(a)는 산화농도의 변화를 알기 위해서 사용된 고성능 바이브레이터와 소형 가열로이다. 고성능 바이브레이터(Model : SEVITA-1000)의 성능은 다음과 같다.

진동은 최대 3800 returns/min 이고 전진하는 최대힘은 6.3 kgf/cm² 이며, 최대 후진하는 힘은 4.7 kgf/cm² 이다. 고성능 바이브레이터의 최적의 진동 위치를 알기 위해서 바이브레이터는 소형가열로의 일정한 위치에서 수직방향(x) 및 수평방향(y)과 경사방향(z)에서 가속도 값이 측정되었다. 그 결과, 가열로의 경사방향(z)에서 최대값인 2.8 mm/sec²로 측정되었다. 따라서 호퍼 경사면이 최적 위치로 결정되었다. Fig. 15(b)는 진동값의 변화에 따라 1 kg 의 우라늄디옥사이드 펠릿이 산화된 결과를 나타낸 것이다. 바이브레이터가 11 분동안 작동되었으며, 산소농도는 진동크기에 비례하여 변화되었

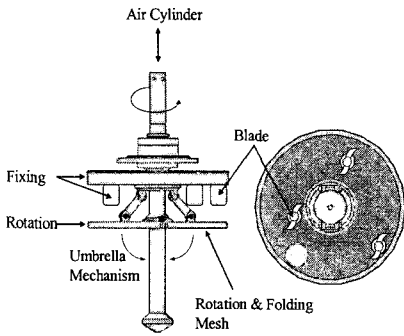


Fig. 16 Mechanism of folding mesh and blade structure

다. 상기 결과로부터 산화시간을 단축하기 위해서 2 개의 바이브레이터가 공기산화로 하단의 호퍼의 경사면에 180 도 방향으로 각각 설치되었다.

3.3 혼합블레이드

발열반응으로 인한 불규칙적인 온도조절을 위해서 혼합 블레이드가 설계되었다. Fig. 16 은 혼합 블레이드의 구조이다. 혼합 블레이드의 반응물질을 혼합하는 원리는 다음과 같다.

회전되지 않는 상부플랜지 밑 부분에 혼합블레이드 3 개가 고정된다. 또한 반응물질이 놓여 있는 접이식 메시는 헬리컬 기어와 1 마력의 모터에 의해 회전된다. 이 원리에 의해서 반응물질은 혼합된다. 블레이드 3 개는 축의 중심으로부터 반경방향이 다르게 설치되었으며, 120 도 간격으로 되어 있다. 또한, 팔산화삼우라늄이 잘 혼합되도록 하기 위해서 블레이드 형상은 사이클로이드 형태로 설계되었다.

3.4 공기산화로의 내경 결정

제작된 공기산화로의 내경(D_U)을 구하는 식은 다음과 같다. 식 (11)과 식 (12)은 스토크스식에 의하여 산출된 실리카와 팔산화삼우라늄의 유량값이다.

$$Q_s = \frac{\pi}{4} D_s^2 \cdot V_s \tag{11}$$

$$Q_U = \frac{\pi}{4} D_U^2 \cdot V_U \tag{12}$$

이때, 입자 크기가 3 μm 이고, 실리카의 공기 공급유량(Q_s)과 팔산화삼우라늄의 공기 공급유량(Q_U)이 같은 유량이라면 제작된 공기산화로의 내경(D_U)은 Fig. 9 그리고 식 (13) 과 식 (14)에 의해

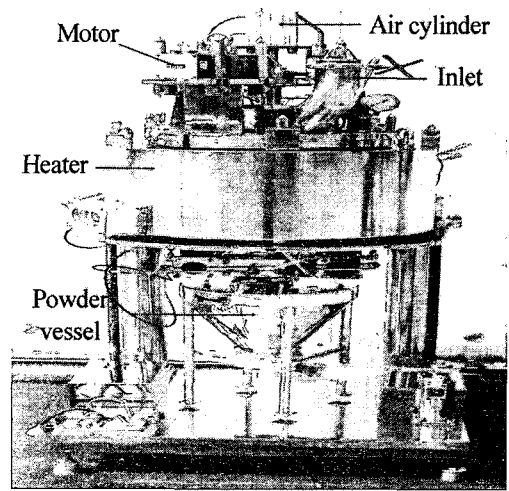


Fig. 17 New vol-oxidizer that improvements items are considered

서 구해진다. 따라서, 제작된 공기산화로의 내경(D_U)은 350 mm 로 결정된다.

$$D_s^2 \cdot V_s = D_U^2 \cdot V_U \tag{13}$$

$$D_U = D_s \cdot \sqrt{\frac{V_s}{V_U}} \tag{14}$$

(여기서, Q_s: 실리카의 공기 공급유량, Q_U: 팔산화삼우라늄의 공기 공급유량, D_s: 실리카의 아크릴 장치 내경, D_U: 제작된 공기산화로의 내경, V_s: 실리카의 유속, V_U: 팔산화삼우라늄의 유속).

3.5 개량된 공기산화로

Fig. 17 은 대용량을 처리할 수 있는 공기산화로이며, 제작된 장치는 상부 모듈부, 히팅부, 그리고 배출부 등의 3 부분으로 구성된다.

작동 방법은 접이식 메시위에 20 kg 의 우라늄디옥사이드 펠릿 (φ 92 mm, L 15 mm)을 올려놓고 500 °C까지 가열한 다음, 산화우라늄 펠릿이 산화되는 동안, 접이식 메시가 3~5 RPM(Revolution Per Minute)으로 회전되면서 혼합블레이드에 의해 반응 시료가 혼합된다. 동시에 산화율을 높이기 위해 고성능 바이브레이터가 작동된다. 우라늄디옥사이드 펠릿의 반응이 끝나면 공기실린더와 축에 의해서 접이식 메시와 축이 열리면서 팔산화삼우라늄은 분말용기로 이송된다. 최종단계로 산화분말은 다음 공정인 금속전환장치로 이송된다.

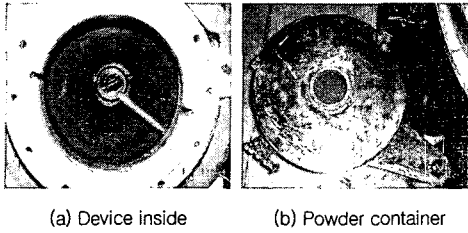


Fig 18 Device inside after powder discharge and container which powder is collected

이와 같이 같이 제작된 공기산화로를 이용하여 검증실험을 수행하였다(직경 700 x 높이 1100 mm).

4. 개량 공기산화로의 실험결과 및 토론

4.1 팔산화삼우라늄분말의 회수율

Fig. 18 은 20 kg 의 우라늄디옥사이드 펠릿이 산화된 후, 팔산화삼우라늄이 분말용기에 회수된 사진이다. Fig. 18(a)에서 팔산화삼우라늄분말의 흔적은 장치 내부에서 발견되지 않았으며, Fig. 18(b)의 팔산화삼우라늄과 분말용기는 디지털 저울에 의해 측정되었다. 또한, 20 kg 의 우라늄디옥사이드 펠릿이 산화되기 전과 후의 우라늄디옥사이드 펠릿의 무게와 부피가 전자저울과 대형 비이커를 이용해서 측정되었다. 그 결과, 산화 전, 20 kg 의 우라늄디옥사이드 펠릿의 벌크(bulk) 상태의 부피는 3.7 L 로 측정되었다. 또한 산화 후, 팔산화삼우라늄의 벌크 상태의 부피는 11 L 이며, 산소와 결합에 의한 무게 증가율(1.0395)을 고려할 때⁽¹⁴⁾ 회수된 팔산화삼우라늄의 무게는 20.6 kg 으로 측정되어었다. 따라서, 팔산화삼우라늄의 회수율은 99 % 이상 회수되었고, 1 차 실험장치에 비하여 70 % 까지 향상되었다.

그러나, 산화완료 후, 팔산화삼우라늄이 분말용기로 이송될 때, 분말이 모두 이송되었는지는 알 수 없었다. 또한, 분말이 모두 이송되었는지를 알기 위해서 분말 배출밸브를 개방한 후, 모니터에 의해서 5 분 간격으로 분말용기 내부를 확인하는 어려움이 있었다. 따라서, 향후 연구에서는 분말이 완전히 배출되었는지의 여부를 자동으로 감지할 수 있는 시스템이 필요하다.

4.2 대용량 우라늄디옥사이드 펠릿의 산화시간

Fig. 19 는 제작된 공기산화로를 사용하여 측정된 20 kg 의 우라늄디옥사이드 펠릿에 대한 산화시간이다. 우라늄디옥사이드 펠릿의 산화시간은 8

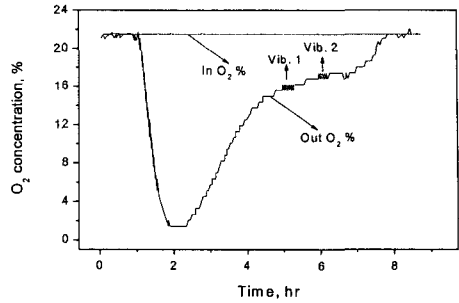


Fig. 19 Oxidation time of the improved vol-oxidizer

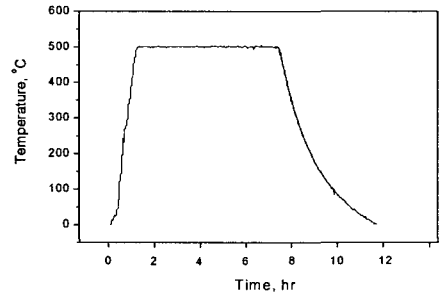


Fig. 20 Temperature changes

시간 소요되었으며, 1 차 실험장치에 비하여 5 시간 단축되었다. Fig. 19 에서, 2 개의 굽은 피크선은 각 구간마다 30 분 동안 고성능 바이브레이터가 작동되었을 때의 산화율이 증가되고 있는 것을 보여준다. 그러나, 공기산화로가 상용 규모로 스케일업(scale up)되기 위해서는 산화시간이 더 단축되어야 할 것이다. 이를 위해서 산화 효율을 높여줄 수 있는 산화제와 산화 조건이 필요하다.⁽¹³⁾ 따라서, 향후 연구는 대용량 우라늄디옥사이드 펠릿에 대한 산화시간의 단축을 위해서 산소농도와 압력의 변화에 따른 산화 시간 연구가 요구된다.⁽¹⁴⁻¹⁶⁾

4.3 대용량 우라늄디옥사이드 펠릿의 발열반응

1 차 실험 결과에서, 발열반응과 불안정한 분말의 열분포 때문에 온도 컨트롤이 어려웠으나, Fig. 20 에서 개발된 공기 산화로에서는 사이크로이드형 블레이드가 발열반응의 온도를 컨트롤하였으며, 이는 Fig. 20 에서 볼 수 있다. 그러나, 만약 수백 kg 의 우라늄디옥사이드 펠릿이 산화 된다면, 발열반응에 의한 온도를 혼합 블레이드로만 조절할 수 없다고 판단된다. 따라서, 스케일 업으로 인하여 시료에서 발생하는 열이 컨트롤되기 위해서 발열반응의 온도는 진보된 개념의 온도컨트롤 방법이 필요하다.

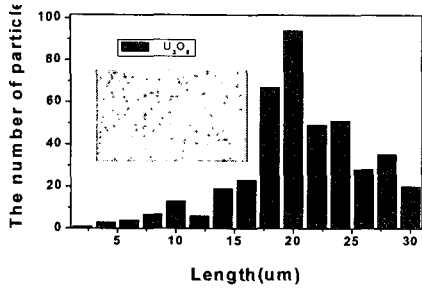


Fig. 21 Particle size distribution of uranium oxide

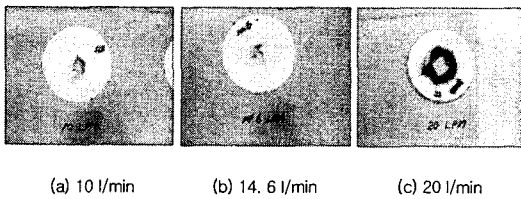


Fig. 22 Experimental results of uranium oxide in output filter

Fig. 21 은 제작된 공기산화로에서 생산된 입도 분포를 보여준다. 평균 입도분포가 23 μm 인 결과로부터 금속전환로에서 필요한 입도범위(20~60 μm)를 만족할 수 있었다. 장치 내부의 불규칙한 온도변화는 혼합 블레이드에 의하여 일정하게 되었음을 알 수 있으며, 온도조절이 가능함에 따라 입도범위를 컨트롤할 수 있었다.^(17,18)

4.4 팔산화삼우라늄분말의 실제 산화유량

Fig. 22 는 분말검출의 유무를 확인하기 위해서 배출여부를 판독한 결과이다. 공기산화로의 상부에 있는 공기출구에 필터 장치를 설치하고, 공기는 단계별로 (10, 14.6, 16.5, 20 l/min) 각각 8 시간 동안 공급하였다. 또한, 장치 출구에서 1 μm 이하의 페이퍼로 여과하여 분말의 존재 여부를 확인하였다. 그 결과, Fig. 22 에서와 같이 10 l/min 에서는 분말이 전혀 확인되지 않았으며, 14.5~16.5 l/min 에서는 분말이 극미량 확인되었다. 한편, Fig. 22(c), 23-b)에서와 같이 20 l/min 에서는 분말이 많이 검출되었다. 따라서, 실험결과로부터 실제유량 결정은 스톡스식보다 밀도비식이 더 유리함을 알 수 있었으며, 비산을 방지하고 산화율을 최대화하기 위해서 공기산화로에 대한 팔산화삼우라늄의 실제 유량을 10 l/min 으로 결정하였다.

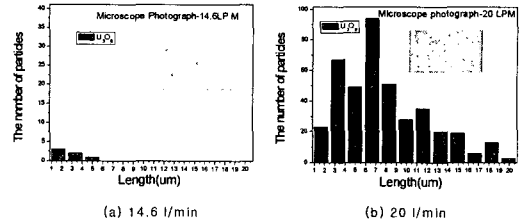


Fig. 23 Results of uranium oxide in output filter using electron microscope

5. 결론

국내·외에서 개발중에 있는 공기산화로는 실험용으로 소량의 핵물질만 취급되고 있는 실정이다. 그러나, 본 연구에서는 대용량의 공기산화로 장치 설계에 적용될 수 있는 4 가지의 고려사항들이 제시되었다. 대용량 설계를 위한 고려사항들을 보면 분말회수율, 펠릿 산화시간, 발열반응의 온도컨트롤, 분말의 비산 등이 포함된다. 제시된 4 가지 고려사항들에 따라 실험용 장치를 이용하여 1 차 실험이 이루어 졌다. 그 결과, 분말 회수율 실험과정에서 장치내부의 습기에 의해서 팔산화삼우라늄분말은 메시의 구멍사이로 투과되지 않았고, 회수율은 30 % 이며, 회수율 향상을 위하여, 접이식 메시가 고안되었다. 또한, 시험용 장치의 산화시간은 13 시간으로 확인되었으며, 산화시간을 단축하기 위해서 고성능 바이브레이터가 사용되었다. 대용량의 펠릿으로 인한 발열반응에 의하여 온도를 컨트롤 할 수 없었으나, 온도 컨트롤과 일정한 입도를 얻기 위하여 혼합 블레이드가 설계되었다. 그리고, 비산방지를 위한 장치의 내경과 최적의 공급 유량을 결정하기 위하여 팔산화삼우라늄 및 실리카의 스톡스식과 밀도비의 이론 관계식을 사용하였다.

이와 같이 설계된 핵심 자료를 가지고 공기산화로 장치가 제작되었으며, 성능을 검증하기 위하여 제작된 장치를 이용하여 실험이 수행되었다. 검증 실험 결과에서, 팔산화삼우라늄의 회수율은 99 % 정도로 많이 향상되었고, 고성능 바이브레이터에 의해 산화시간은 당초 13 시간에서 8 시간으로 단축되었다. 또한, 사이클로이드형 혼합블레이드를 사용함으로써 장치내의 온도를 안정적으로 유지하였고, 23 μm 크기의 최적 입도분포를 만들 수 있었다. 팔산화삼우라늄이 비산되지 않는 최적유량은 10 l/min 이하이며, 스톡스식보다 밀도비식이

유리함을 알 수 있었다.

본 논문에서 제시된 대용량 공기산화로 장치의 설계를 위한 4 가지 고려사항들은 실증용 공기산화로 장치의 구조, 성능 및 크기 등을 결정하는데 참고할 수 있는 기준이 되고, 대용량의 실증용 공기산화로 장치를 설계하는데 활용될 수 있을 것으로 판단한다. 향후, 연구에서는 첨단 대용량 공기산화로가 설계되기 위해서는 산화 완료후 장치 내부에 있는 분말이 모두 배출되었는지를 확인할 수 있는 자동감지 시스템이 개발되어야 한다.

후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력 중장기연구개발 사업의 일환으로 수행되었음.

참고문헌

- (1) Cul, B.D., Hunt, R.H. and 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 UO₂ Reactor Fuels" *ANS, Meeting on Fuel Cycles for Eighties*, DP-MS-80-9, Sep.-Oct.
- (3) Inoue, A. and Tsujino, T., 1984, "Dissolution Rate of U₃O₈ Powders in Nitric Acid," *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, Vol. 23, pp.122~125.
- (4) Uchiyama, G., Kitamura, M., Yamazaki, K., 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. and Yamazaki, K., 1991, "Development of Vol-Oxidation Process for Tritium Control in Reprocessing," *JAERI-M*, 91-199, Nov..
- (6) Nishimura, T., Sakamura, Y. and Inoue, T., 2005, "Conceptual Design Study of Pyroreprocessing Facilities for LWR MOX Fuel Using Electroreduction and Electrorefining Techniques," *Proceedings of GLOBAL 2005*, Tsukuba, Japan, Oct. 9-13, 218.
- (7) Liu, Z., Cox, D.S., Barrand, R.D., et al., 1992, "Particle Size Distributions of U₃O₈ Produced by Oxidation in Air at 300-900 °C," *The 13th Annual Conference of the Canadian Nuclear Society*, Saint John, New Brunswick, Canada Jun..
- (8) Johnson, D.R., 1978, "The Preparation of Controlled Particle Size U₃O₈ by Uranyl Formate Precipitation and Calcinations," *Distribution Category UC-25*, DP-1466, Nov..
- (9) Katz, V. J., 1979, "The History of Stokes' Theorem," *Math. Mag.* Vol. 52, No. 3, pp. 146~156.
- (10) <http://www.grc.nasa.gov/WWW/K-12/airplane/shaped.html>.
- (11) Uchiyama, G., Torikai, S., Kitamura M., et al., 1990, "Outline of an Experimental Apparatus for the Study on the Advanced Voloxidation Process," *JAERI-M*, 90-016, Jan..
- (12) Peakallr K.A. and Antill, J.E., 1960, "Oxidation of Uranium Dioxide in Air at 350-1000°," *Journal of Nuclear Materials*, Vol. 2, No. 2, pp.194~195.
- (13) Bazyn, T., Krier, H. and Glumac, N., "Oxidizer and Pressure Effects on the Combustion of 10- μ m Aluminum Particles, 2005," *Journal of Propulsion and Power*, 21[4], Jul.-Aug..
- (14) Bradford, M.R., 2005, "Chemical Processes in the Oxidation and Degradation of AGR Oxide Fuel," *Nuclear Energy*, Vol. 35, No. 5, pp. 321~330, Oct..
- (15) Dharwadkar, S.R. and Karkhanavara, M.D., 1975, "High Temperature Oxidation of Uranium Dioxide: Part II-Pressure & Temperature Dependence of the Oxidation Rate," *Indian Journal of Chemistry*, Vol. 13, pp. 685~688, Jul..
- (16) Cadieux, J.R. and Stone, J.A., 1980, "Vol-Oxidation and Dissolution of Irradiated Plutonium Recycle Fuels," *ANS, Meeting on Fuel Cycles for Eighties*, DP-MS-80-10, Sep.-Oct..
- (17) Iwasaki, M., Sakurai, T. and Ishikawa, N., 1968, "Oxidation of UO₂ Pellets in Air: Effect of Heat-Treatment of Pellet on Particle Size Distribution of Powders Produced," *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 5, No. 12, pp. 653~653, Dec..
- (18) Kendrick, L.S., Wilson, W.A. and Mosley, W.C., 1984, "The Production of U₃O₈ by Uranyl Formate Precipitation and Calcinations in a Full-Scale Pilot Facility," *Distribution Category UC-4*, DP-1688, Aug..
- (19) Luebben, T. E., Rosen, F. D., et al., 1960, "Low Decontamination-Processing of Uranium Dioxide by Oxidation and Reduction," *Atomics International*, Canoga Park, Calif. Vol. 52, No.1, Jun..
- (20) Jagow, R.B., 1976, "Design, Fabrication and Testing of a Spacecraft Wet Oxidation System Including Trash Pulverization Studies," *American Society of Mechanical Engineers*, 76-ENAs-15, 18, Jun..
- (21) Adachi, K., Kiriya, S. and Yoshioka, N., 1978, "The Behavior a Swarm of Particles Moving in a Viscous Fluid," *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 33, p. 115.
- (22) Stone, J.A. and Johnson, D.R., 1981, "Measurement of Radioactive Gaseous Effluents From Vol-Oxidation and Dissolution of Spent Nuclear Fuel," *15th DOE Nuclear Air Cleaning*.
- (23) Alagy, J., Trambouze, P., Van Landeghem, H., 1974, "Designing a Cyclohexane Oxidation Reactor," *Ind. Eng. Chem., Process Des. Develop.*, Vol. 13, No. 4.