

## Uranium Ingot Casting Method with Uranium Deposit in a Pyroprocessing

### 사용후핵연료 파이로 공정 중 우라늄 전착물의 잉곳 제조 방법

Yoon-Sang Lee<sup>1)</sup>, Choon-Ho Cho, Sung-Ho Lee, Jeong-Guk Kim and Han-Soo Lee

Korea Atomic Energy Research Institute, 1045 Daedeok-daero, Yuseong-gu, Daejeon

이윤상<sup>1)</sup>, 조춘호, 이성호, 김정국, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

(Received December 29, 2009 / Revised March 29, 2010 / Approved March 30, 2010)

#### Abstract

The uranium ingot casting process is one of the steps which consolidate uranium deposits produced by electrorefiner as an ingot form in a pyroprocessing technique. This paper introduces new design concept of the ingot casting equipment and the performance test results of the lab-scale ingot casting equipment fabricated based on the design concept.

Casting equipment produces the uranium ingot by pouring an uranium melt into a mold by tilting a melting crucible. Also it is equipped with a cup which is able to continuously feed uranium deposits into a melting crucible. The productivity could be significantly enhanced by introducing the continuous operation concept.

**Key words** : Pyroprocessing, Uranium casting, Uranium ingot

#### 요약

사용후핵연료 파이로프로세싱 공정 생성물인 우라늄 전착물을 잉곳 형태로 주조하는 공정이 있다. 이 논문에서는 실험실 규모의 우라늄 전착물 잉곳 주조 장치에 대한 설계 개념을 소개하고, 이에 따라 제작된 장치의 성능 시험 결과 및 우라늄을 사용한 잉곳 주조 시험 결과를 소개한다.

이 장치는 도가니를 경동시켜 우라늄 용탕을 주형에 주입하여 우라늄 잉곳을 제조하며, 우라늄 전착물을 연속으로 주입할 수 있는 컵 형태의 원료 장입장치를 장착하였다. 이러한 장치를 사용하면 우라늄 전착물의 잉곳 생산성을 높일 수 있다. 실험 결과 우라늄 원료를 장입하여 주조한 결과 수축공이 적은 양호한 주물을 제조하는데 성공하였으며, 이러한 실험실 규모의 장치를 개발한 경험을 활용하여 공학규모의 장치를 설계하는데 활용하였다.

**중심단어** : 파이로프로세싱(핵연료건식처리), 우라늄 주조, 우라늄 잉곳

1) Corresponding Author. E-mail : yslee@kaeri.re.kr

I. 서론

한국원자력연구원에서 개발 중인 사용후핵연료 파이로 공정에서 전해정련에 의해 생성된 우라늄 전착물은 부스러기의 형태로 되어 있어, 보관을 하거나 재사용을 하려면 이러한 우라늄 부스러기를 꺾 형태로 제조하는 우라늄 전착물 잉곳 주조 공정이 필요하다.[1,2] 우라늄 전착물은 전해정련 반응기에서 LiCl-KCl 용융염 내에서 전기분해 방법에 의해 생성되기 때문에 전해정련에서 얻어지는 우라늄 전착물 내에는 염이 30% 이상 포함되어 있다. 이러한 염을 제거하기 위해 염증류 장치를 사용하여 염을 휘발시킨다. 염을 휘발시킨 후 얻어진 순수한 우라늄 부스러기가 우라늄 잉곳주조 공정의 원료가 된다.

미국 아이다호국립연구소(Idaho National Laboratory, INL)에서는 그림 1과 같은 cathode processor라는 장치를 사용하여 우라늄 전착물을 우라늄 잉곳으로 제조하는데[3, 4], 이 장치의 공정 특징은 도가니에 우라늄 전착물을 장입한 후 약 10 Torr 부근에서 900 ~ 950℃로 가열하여 염을 휘발시킨 후 1300 ℃로 가열하여 전착물을 용해시킨 후 도가니를 자연 냉각시켜 잉곳을 만든다. 그러나 이러한 장치는 회분식 형태로 생산성이 낮을 뿐 아니라, 도가니에 잉곳이 용착하는 단점이 있다.

우리 연구원에서는 생산성을 높이고, 도가니에 잉곳이 용착하는 단점을 보완하기 위하여 염휘발 및 잉곳 주조 공정을 분리시켰고, 잉곳주조 공정에서는 원료를 연속장입할 수 있는 방안 및 도가니를 경동시켜 주형에 용탕을 주입하여 잉곳을 제조하는 개념을 도입하여 잉곳 생산성을 높이도록 하였다.

이 논문에서는 실험실 규모의 우라늄 전착물 잉곳 주조 장치

에 대한 설계 개념을 소개하고, 이에 따라 제작된 장치의 성능 시험 결과 및 우라늄을 사용한 잉곳 주조 시험 결과를 소개하고자 한다.

II. 본 론

가. 잉곳주조 장치 설계

우라늄잉곳 주조 장치는 염 증류장치에서 회수된 금속우라늄 전착물을 녹여 잉곳 형태로 제조하는 장치이다. 우라늄의 융점은 1132 ℃로서 고주파 유도가열 방식으로 도가니에 장입된 전착물의 온도를 1132 ℃ 보다 높은 약 1300 ℃로 승온시켜 용탕이 주형으로 주입 중 충분한 열을 가지고 흐를 수 있도록 가열한 후 주형에 주입하여 원하는 형태의 잉곳으로 주조하게 된다.

INL에서는 Batch 형태로 전착물을 한 도가니에 넣고 용해 후 도가니 냉각으로 한 번에 우라늄 잉곳을 1개 생산하고 있으나, 우리가 제안한 연속식 우라늄 잉곳 주조 장치는 도가니에 연속하여 전착물을 장입할 수 있으며, 도가니에서 전착물을 용해한 후, 도가니를 기울여(tilting), 주형에 출탕하여 우라늄 잉곳을 연속적으로 생산하므로, 잉곳 생산 효율이 높은 장치이다.

그림 2는 잉곳주조장치의 개념도로서 원료 공급 장치는 컵 형태로 되어 있으며, 상부에서 우라늄 전착물을 이 컵에 떨어트린 후 공압 실린더로 컵을 도가니 상부로 이송시키고, 도가니 상부에서 컵을 기울여 원료를 장입한 후 도가니를 고주파 유도 가열 방식으로 가열시킨다. 이 전착물이 용해되면 도가니 아래에 위치한 주형에 용탕을 주입한다. 이 장치는 실험실 규모로 제작하였기 때문에 주형을 연속으로 꺼내는 장치는 장착하지 않았다. 주형에 주입한 용탕이 냉

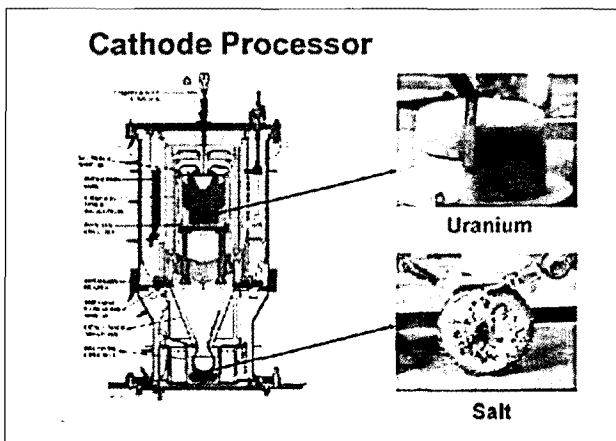


Fig. 1. Cathode processor of INL.

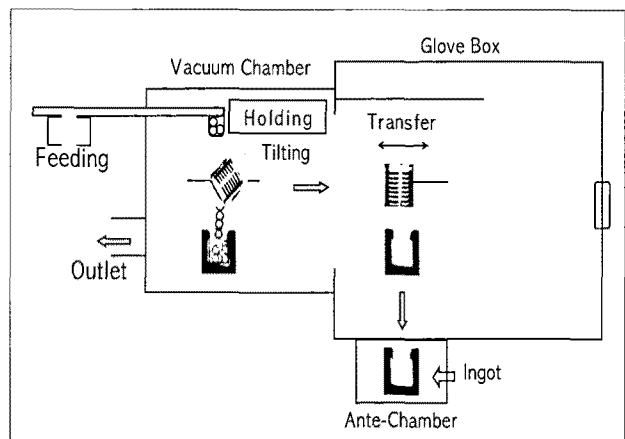


Fig. 2. Schematic diagram of an ingot casting equipment.

각되어 잉곳이 되면, 진공 챔버 문을, 글로브 박스 내로 이송시킨 후, 주형에서 잉곳을 꺼낸 후 Antechamber로 내려 보낸다. Antechamber 앞문을 열고 잉곳을 밖으로 꺼내면 조업이 완료된다. 그림 3은 이러한 개념으로 제작된 실험실 규모의 잉곳주조장치의 전경이다.

**나. 제작된 잉곳주조 장치의 성능 평가**

잉곳주조장치의 성능평가를 위해 잉곳주조장치의 도가니, 주형 및 진공 챔버 내부 4곳 등 모두 6곳에 열전대를 설치하고, 고주파유도가열 발전기의 출력을 10 ~ 15 kW로 변화시키면서 장치의 성능을 평가하였다. 우라늄은 열용량이 Cu의 약 1/3 정도되며, Cu보다 더 잘 가열된다. 비중은 구리의 약 2.1배로 잉곳제조장치의 성능평가를 위해 Cu 약 1.5 kg을 장입하였는데, 이는 우라늄 약 4.5 kg에 해당하는 열을 필요로 한다.

그림 4와 같이 진공챔버 내 도가니 주위에 열전대를 설치하고, 고주파 발전기의 출력을 15 kW로 가열하면서 파이로

미터로 측정된 용탕의 온도가 1180 ℃가 되어 이 온도에서 도가니를 틸팅시켜 용탕을 주형에 주입하였다. 이러한 실험 중 각 열전대의 최대 온도는 그림 5와 같이 진공챔버 상부에서 10 cm 하부에 위치한, 즉 도가니 뚜껑 상부에 위치한 열전대의 온도는 약 210 ℃, 그림에서 챔버 좌 상부, 챔버 벽쪽에서 20 cm 안으로 들어 설치한 열전대의 온도는 142 ℃, 챔버 좌 중앙부 벽쪽에서 20 cm 안으로 들어 설치한 열전대의 온도는 95 ℃, 그리고 배기구 쪽으로 챔버 뒤쪽으로 챔버 벽쪽에서 20 cm 안으로 설치한 열전대의 온도도 95 ℃로 측정되었다. 주형 가열장치는 예열시키지 않았고 이때 온도는 60 ℃가 되었다. 주형 가열장치는 최대 700 ℃까지 가열할 수 있는 heater가 설치되어 있다.

Cu 용탕을 도가니를 기울여 흑연 주형에 주입하였는데, Cu 용탕이 원활이 주입되었다. 주형에서 잉곳을 분리하기 위해 글로브 박스 밖으로 주형을 빼내, 주형을 뒤집어 충격을 주면 쉽게 잉곳을 회수할 수 있었다. 회수한 잉곳은 그림 6과 같다.

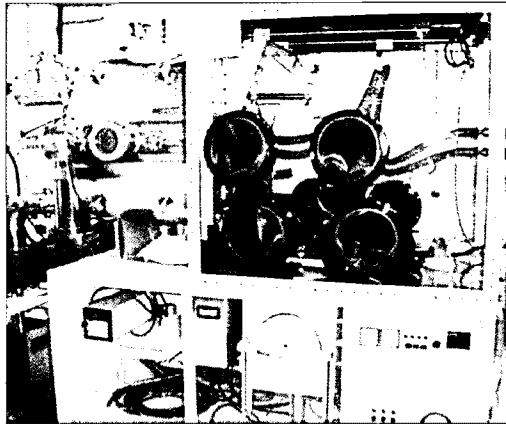


Fig. 3. Photograph of ingot casting equipment.

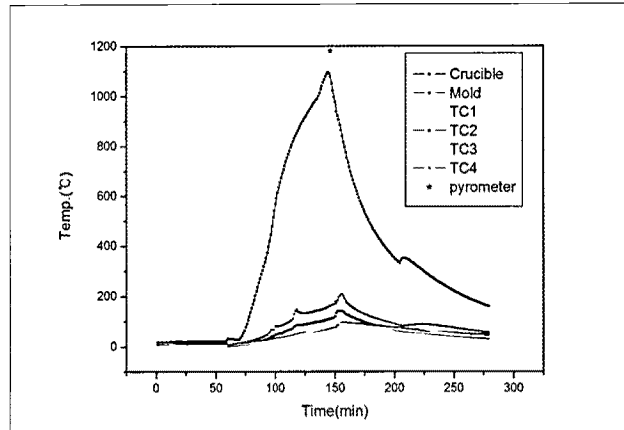


Fig. 5. Temperature profile of heating experiment with Cu ingot.

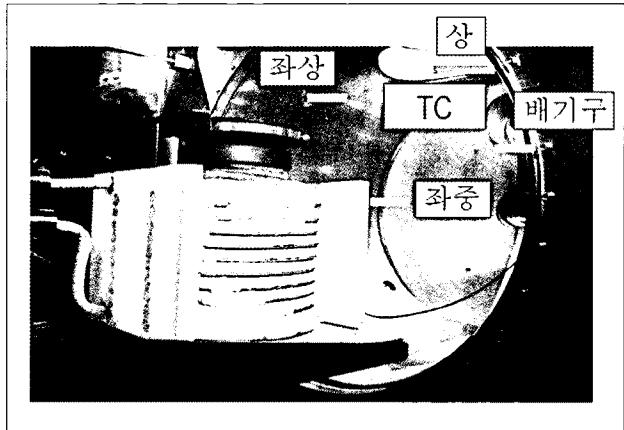


Fig. 4. Photograph of induction crucible. (Red color bars indicates the locations of thermocouple installation.)

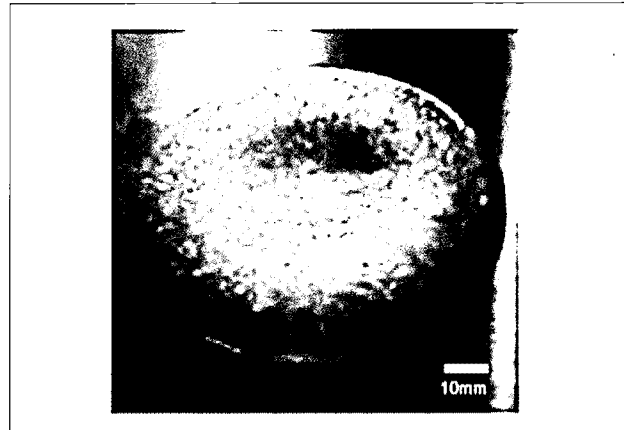


Fig. 6. Cu ingot produced using an ingot casting equipment.

**다. 우라늄 잉곳 제조**

**① 도가니 코팅**

구리를 용해할 때에는 흑연도가니를 사용하지만, 우라늄을 용해할 때에는 우라늄 용탕이 흑연도가니와 반응하므로 흑연도가니를 사용할 수 없다. 따라서 우라늄 용해 시에는 우라늄과 반응하지 않는 세라믹 재료를 선택하여 흑연도가니 표면에 코팅하여 사용한다.

우라늄 용해 시 우라늄 용탕과 반응하지 않는 산화물 세라믹 재질을 선정하기 위해 HSC[5] 열역학 s/w를 사용하여 반응 Gibbs Free Energy를 계산하여 보았다.

일반적으로 도가니로 사용되는 세라믹 재질인 알루미늄, 이트리아, 칼시아, 지르코니아, 마그네시아 등의 세라믹 재료에 대해 Gibbs Free Energy를 계산하여 보았는데, 그림 7과 같이 이트리아가 가장 우수한 재료임을 알 수 있었다.

이러한 이트리아 재료를 흑연도가니에 코팅하기 위해 플라즈마 용사법을 적용하였다. 플라즈마 용사에 사용되는 토치는

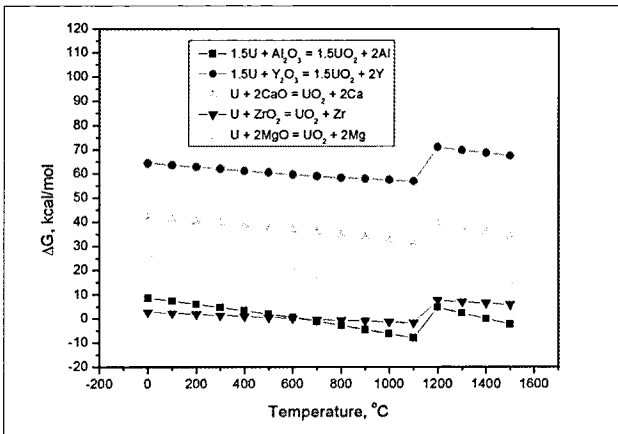


Fig. 7. Chemical stability of oxide materials with uranium.

대개 30 ~ 80 kW의 직류 아크토치로 Ar과 H<sub>2</sub>가 4:1 정도로 섞어 60 liter/min로 분사하면 고온의 열플라즈마가 발생하며, 시간당 3~5 kg의 이트리아 분말을 주입하여 150~250 μm 두께의 고밀도 고부착력의 피막을 얻는다. 그림 8은 이 방법으로 이트리아 코팅된 도가니 사진이다.

**② 우라늄 주조 방법**

감손우라늄 원료를 약 4.8 kg을 도가니에 장입하고, 도가니의 온도를 1300 °C까지 승온한 후 도가니를 틸팅시켜, 주형에 주입하였다. 우라늄 용해 실험에서는 고주파 발전기 출력을 PID 제어를 통하여 도가니의 온도를 10분간 500 °C, 10분간 900 °C, 10분간은 1200 °C로 승온시킨 후, 1300 °C까지는 수동으로 출력 15 kW를 가하여 우라늄 용탕의 온도를 약 1300 °C로 승온시켰다. 그림 4에 설치한 열전대에 추가하여 주형의 상, 중, 하부에 열전대를 설치하고, 온도 변화를 기록한 결과 그림 9와 같다.

이러한 실험 중 각 열전대의 최대 온도는 그림 9와 같이

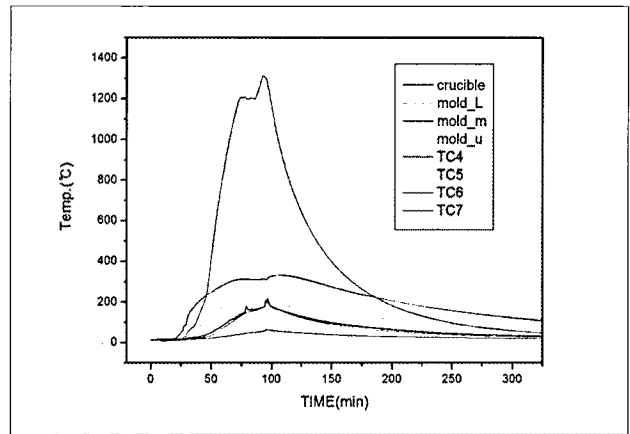


Fig. 9. Temperature profile of heating experiment with DU ingot.

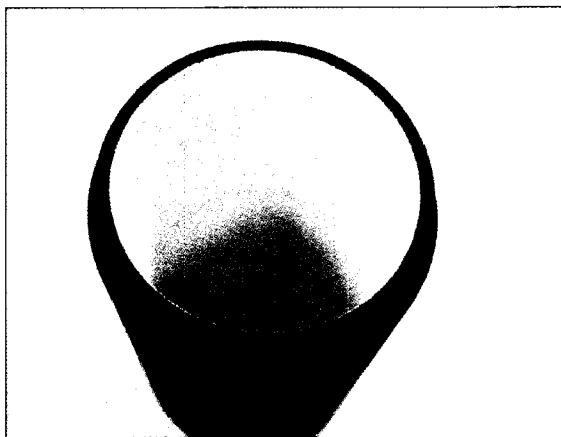


Fig. 8. Lab. scale crucible coated with yttria using a plasma spray coating method.

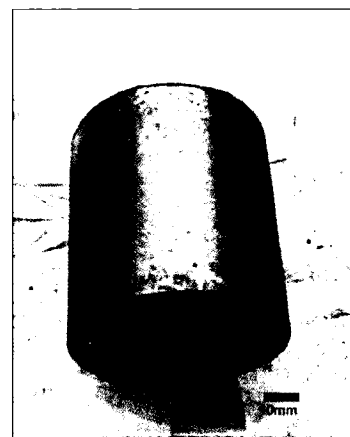


Fig. 10. Uranium ingot fabricated with the ingot casting equipment.

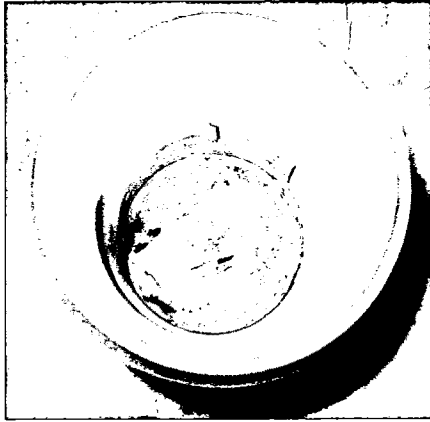


Fig. 11. The yttria coated crucible after second time uranium melting.

진공챔버 상부에서 10 cm 하부에 위치한, 즉 도가니 뚜껑 상부에 위치한 열전대의 온도는 약 200 ℃, 그림에서 챔버 좌 상부, 챔버 벽쪽에서 20 cm 안으로 들여 설치한 열전대의 온도는 182 ℃, 챔버 좌 중앙부 벽쪽에서 20 cm 안으로 들여 설치한 열전대의 온도는 213 ℃, 그리고 배기구 쪽으로 챔버 뒤쪽으로 챔버 벽쪽에서 20 cm 안으로 설치한 열전대의 온도도 95 ℃로 측정되었다. 주형 가열장치는 300 ℃로 예열시킨 상태에서 용탕을 주입하였으며, 용탕을 주입한 후 333 ℃로 승온되었다가 온도가 서서히 떨어졌다.

### ③ 결과

그림 10과 같이 수축공은 크게 발생하지 않았으며, 지름 약 68 mm, 높이 약 70 mm 무게 약 4.8 kg의 우라늄 잉곳이 성공적으로 제조되었다.

또한 이트리아 코팅된 도가니를 관찰해보니, 2차례 용해한 후에도 그림 11과 같이 코팅층이 건전하게 유지됨을 확인하였다.

## III. 결론

사용후핵연료 파이로프로세싱 공정 생성물인 우라늄 전착물을 잉곳형태로 제조하는 실험실 규모의 장치를 제작하여, Cu와 같은 대체물질을 사용하여 장치의 안전성 및 기능에 대해 실험을 한 후, DU를 사용하여 잉곳제조 실험을 한 결과, 수축공이 적은 건전한 잉곳을 생산할 수 있었으며, 이트리아 코팅된 도가니의 재사용 가능성을 확인하였다. 이와 같은 실험을 통해 연속조업의 가능성을 확인하였으며, 외국 방식에 비해 생산성을 높일 수 있음을 확인하였다.

## 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부에서 주관하는 원자력증장기개

발사업의 일환으로 수행하였습니다.

## 참고문헌

- [1] 유재형, 이병직, 이한수, 김응호, “고온전해분리 기술의 개요 및 기존 핵연료주기 대체 기술로서의 적합성 검토”, 방사성폐기물학회지, 5(4), pp. 283-295 (2007).
- [2] 유재형, 홍권표, 이한수, “사용후핵연료 파이로 처리공정 실증시설의 개념설계 연구”, 방사성폐기물학회지, 6(3), pp. 233-244 (2008).
- [3] B. R. Westphal, J.C. Price, D. Vaden, R.W. Benedict, "Engineering-scale distillation of cadmium for actinide recovery", Journal of Alloys and Compounds, JALCOM-15816 (2007).
- [4] A. R. Brunsvold, P. D. Roach and B. R. Westphal, "Design and development of a cathode processor for electrometallurgical treatment of spent nuclear fuel", Proceedings of ICON 8: 8th International Conference on Nuclear Engineering, April 2-6, USA, Baltimore (2000).
- [5] Chempute software, "User's Guide of Outokumpu HSC Chemistry for Windows", HSC Chemistry Ver. 5.1.(2002)