

전해환원공정 발생 용융염의 취급용이성 향상을 위한
펠렛 제조공정 개발

Development of Pelletizing Process for the Handling of the Molten
Salt from the Electrochemical Reduction Process

정명수, 허진목, 홍순석, 서중석, 박성원
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

한국원자력연구소에서 수행하고 있는 '사용후핵연료 관리·이용 기술개발'의 일환으로 전해환원공정에 사용되는 LiCl-Li₂O 용융염의 취급성 향상을 위한 공정을 개발하였다. 초기에는 용융염을 급속냉각방식에 의해 bead화하는 공정을 개발하였으나 장치 특성상 불규칙한 형상과 크기의 bead가 제조되었으며, 이를 개선하기 위하여 연속 회전식 고화법에 의한 펠렛 제조개념을 도출하였다. 50 kg LiCl/batch 규모의 용융염 재순환용 펠렛 제조장치를 설계/제작하여 성능평가를 수행하였으며, 그 결과 일정 크기 원기둥 모양 펠렛을 연속적으로 제조하는 한편, Hot cell 실증 적용 장치의 설계 자료를 확보할 수 있었다.

Abstract

A process for the easy handling of a LiCl-Li₂O molten salt was developed as a part of the research effort to complete the 'Advanced Spent Fuel Conditioning Process (ACP)' of KAERI. Firstly, the process making a used molten salt into a bead shape was designed. However the resultant bead was in an irregular shape and size. So, the pelletizing process using a continuous rotation and solidification method was developed to tackle the problem of the bead process. The design/manufacture and performance test of the 50 kg LiCl/batch scale apparatus was carried out resulting in the production of the cylindrical pellet with regular size ensuring the design data of the apparatus which is applicable to the hot cell demonstration of ACP.

1. 서 론

한국원자력연구소에서는 1997년 이래로 사용후핵연료 관리·이용 기술개발(Advanced Spent Fuel Conditioning Process(ACP))에 대한 연구를 수행하고 있다 [1-3]. 공정의 개념은 사용후핵연료를 고온 용융염에서 금속으로 전해환원시키는 과정에서 Cs, Sr 등의 고방열핵종을 분리하고, 이를 통해서 사용후핵연료의 발열량, 부피 및 방사능을 1/4로 감소시키는 것이다. 그런데 ACP 공정의 경제성과 환경친화성을 증진시키기 위해서는 전해환원공정의 반응매질인 LiCl-Li₂O 용융염을 회수하여 재사용하여야 한다. 그런데 용융염은 대기 중에서 쉽게 조해되고 용융점(LiCl의 경우에는 610 °C) 이하의 온도에서는 고화되는 특성을 가지고 있다. 따라서 용융염을 취급하는 공정은 이들 측면을 고려하여 설계되고 운전되어야 한다. 본 연구에서는 전해환원공정이 끝난 후 반응매질인 용융염을 금속 전환체와 분리한 다음 취급이 용이한 형태로 고화시켜 재사용을 위한 이송, neutron counter를 사용한 계량, Padirac Cask를 이용한 용융염 반출 등의 단위공정에서의 용융염 취급성을 향상시키고자 하였다.

선행연구는 전해환원공정에서 이송된 용융염을 620 °C로 가열하여 액화시킨 후, 노즐을 통하여 배출된 용융염을 냉각 jacket 부분에서 급냉시켜 bead로 제조하는 용융염 bead화 공정을 개발하는 방향으로 수행되었다. 그러나 노즐을 통과하여 냉각부에 도달한 고온 용융염이 순간 급냉되지 않는다는 점이 밝혀졌으며, 이에 따라 용융염 bead 저장용기 내부에 냉각수가 흐르는 냉각침을 설치하고, 고온 용융염 알갱이가 이 냉각 미세침에 낙하하여 사방으로 비산함과 동시에 고화되어 bead가 되게끔 장치를 설계하여 성능평가를 수행하였다. 그 결과 노즐의 직경이 2 mm인 조건에서 직경 1 - 3 mm 크기와 5 - 10 mm 크기의 용융염 bead가 대략 4 : 6의 비로 제조되는 등 불규칙한 형상과 크기의 bead가 제조되었다.

본 연구에서는 용융염을 일정한 크기와 형상으로 고화시켜 용융염 취급성을 향상시키고자 하였다. 즉, 고온에서 용융된 염을 노즐을 통하여 원기둥 모양의 형틀(mold)에 붓고 일정 시간동안 방치, 냉각시켜 일정 크기의 염 펠렛으로 제조하는 개념을 도출하고, 50 kg LiCl/batch 규모의 용융염 재순환용 펠렛 제조장치를 설계/제작하여 성능평가를 수행하였다.

2. 실험 장치 및 방법

-장치개념 : 금속전환장치에서 발생된 혼합용융염을 이송관을 통하여 염 펠렛 제조장치로 감압 이송하여 베셀에 저장한다. 노즐을 통하여 베셀로부터 일정량 배출되는 고온 용융염은 원기둥 모양의 형틀에서 일정 시간동안 냉각되어 실린더 모양의 펠렛으로 고화되게 된다. 본 장치는 열두 개의 형틀은 모터 및 타이머에 의해 회전 운동을 함으로서 연속적으로 펠렛을 제조할 수 있는 자동화 시스템이다.

-장치 구성 : 본 장치는 Fig. 1과 같이 제작, 설치하였으며, 베셀, 가열로, 노즐, 염펠렛 제조틀, 염펠렛 제조틀 받침대, 하우징, 염펠렛 분리기, 염펠렛 저장용기, 제어판 등으로 구성하였다.

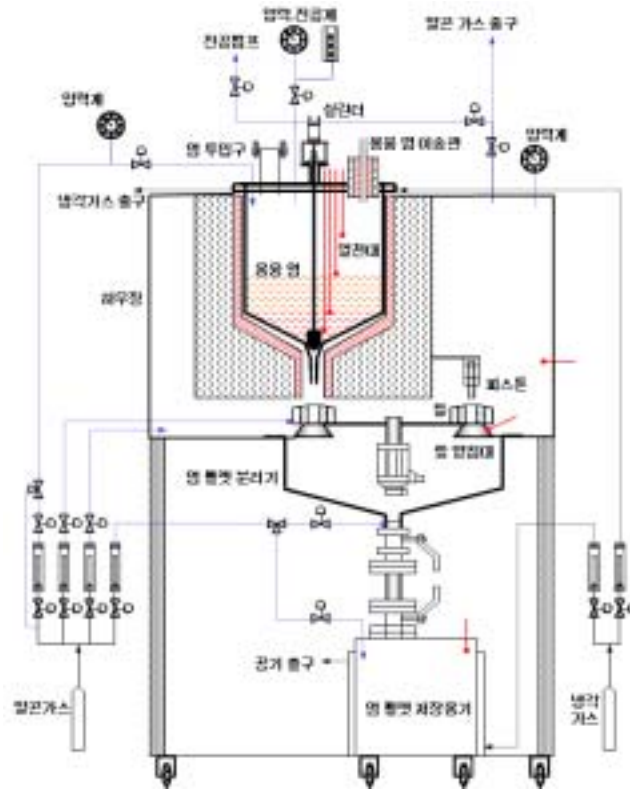


Fig. 1. Schematic diagram of the pelletizing apparatus in the scale of 50 kg LiCl/batch.

- 노즐 : 내경 3.0 mm, Inconel 625 재질로 가공하였고, 노즐의 길이는 15 mm, 노즐 출구에서 용융염 펠렛 제조 틀 구멍의 바닥까지의 높이는 120 mm로 설치하였다. 노즐의 표면에는 열전대를 설치하고 온도 조절기를 이용하여 노즐 내부의 용융염 온도가 용융점보다 높은 650 ℃로 일정하게 유지하도록 하였다.

- 용융염펠렛 제조틀 : 본 장치는 Fig. 2에 나타난 바와 같으며, 용융염을 냉각 고화시키기 위해 틀 내부에는 알곤 가스를 공급하는 시스템을 설치하였다. 노즐을 통하여 배출되는 일정량의 고온 용융염은 원기둥 모양의 형틀에서 냉각되어 펠렛으로 고화되게 된다. 본 자동화시스템에 의하여 열두 개의 형틀이 모터 및 타이머에 의해 회전 운동을 함으로써 연속적으로 펠렛을 제조할 수 있다. 열두 개의 형틀 중 첫 번째 틀에서부터 일곱 번째 틀까지 염을 받아 굳힌 다음, 여덟 번째와 아홉 번째 틀(염펠렛 배출구)에서 고화된 염펠렛이 틀 구멍에서 밑으로 떨어져 염 펠렛 분리기를 거치면서 재차 알곤 가스에 의해

냉각되고 염 펠렛 저장용기에 보관되게 된다. 염펠렛 배출 구멍 상부에 직경 25 mm의 실린더형 피스톤을 두 개 설치하여, 제조된 염 펠렛을 주기적으로 밀어 주도록 하였다. 피스톤의 상,하 작동은 알곤 가스에 의해 동작되는 압력 실린더를 이용하고, 상,하 작동의 주기는 타이머와 센서로 제어했다.

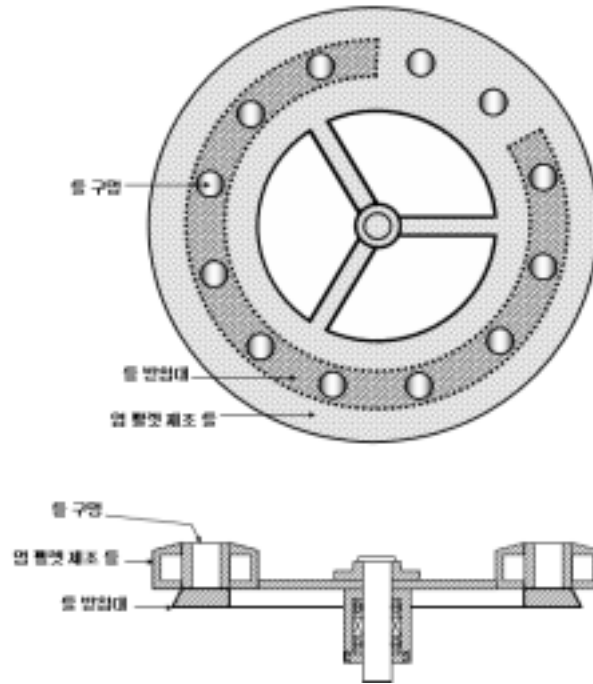


Fig. 2. The mold and mold support of the 50 kg LiCl/batch scale pelletizing apparatus.

3. 결과 및 고찰

노즐에서 용융염이 배출되는 속도는 에너지 보존법칙에서 유도된 베르누이 정리에 의해서 아래와 같이 계산 가능하다. 이때 용융염의 표면장력과 점도 영향은 무시된다.

$$\frac{V_1^2}{2g} + h_1 = \frac{V_2^2}{2g}$$

$$V_2 = c\sqrt{2gh_1}$$

V_1 : 베셀 액위면에서의 용융염속도 = 0

V_2 : 노즐에서의 용융염 배출속도

h_1 : 베셀 액위면 높이

c : contraction coefficient

유체의 레이놀즈 수가 크면 contraction coefficient c 는 노즐의 형상에 의존하게 되고, 원형 노즐의 경우 노즐직경 (d)와 입구부의 직경 (D)의 비가 0.3 이하이면 c 는 0.62가 된다. 50 kg의 용융염이 베셀에 공급될 경우, 베셀에서의 용융염 액위는 37 cm이고 노즐부 길이가 12 cm이므로 h_1 은 0.49 m가 된다. 위 식에 의해서 노즐에서의 용융염 배출속도를 구하면, V_2 는 1.9 m/sec가 된다. 그런데 V_2 는 펠렛 제조공정이 진행됨에 따라 베셀에서의 용융염 액위가 낮아질수록 h_1 의 제곱근에 비례하여 감소할 것이다. 노즐부에만 용융염이 차 있는 경우에는 h_1 이 12 cm이므로, V_2 는 0.95 m/sec가 된다.

650 °C LiCl 용융염의 점도와 밀도는 각각 1.60 cP와 1.49 g/cm³이다 [4]. 따라서 V_2 가 1.9 m/sec일 때, 레이놀즈 수는 아래 식에 의해서 다음과 같이 계산된다. 이 조건에서 용융염은 노즐 부위에서 turbulence flow를 형성하게 되며, 앞서 기술한 대로 contraction coefficient는 노즐의 형상에 의존하게 된다.

$$N_{Re} = \frac{DV\rho}{\mu} = \frac{0.32 \text{ cm} \times 190 \text{ cm/sec} \times 1.49 \text{ g/cm}^3}{0.016 \text{ g/cm} \cdot \text{sec}} = 5662$$

V_2 가 1.9 m/sec와 0.95 m/sec일 때 용융염은 노즐을 통하여 초당 각각 15.3 cm³/sec와 7.64 cm³/sec 배출된다. 제조틀 틀구멍 직경이 3 cm이므로 이는 제조틀 틀구멍이 각각 2.16 cm/sec와 1.08 cm/sec의 속도로 채워지게 됨을 의미한다.

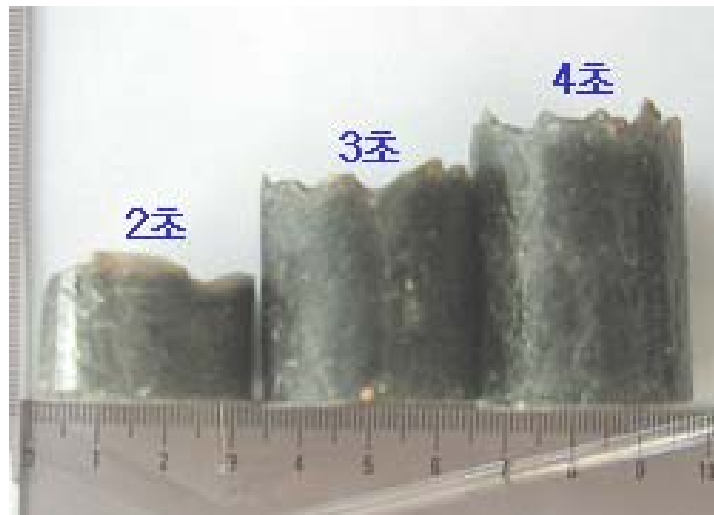


Fig. 3. The produced pellet from the 50 kg LiCl/batch scale pelletizing apparatus.

용융염 배출밸브를 여는 시간을 2초, 3초, 4초로 각각 제어하면서, 베셀 액위면 높이 h_1 이 ~0.17 m인 조건에서 실험을 수행한 결과 Fig. 3에 나타난 바와 같이 펠렛을 제조할 수 있었다. 앞서 기술한 방식대로 h_1 이 ~0.17 m일 때 제조틀 틀구멍이 채워지는 속도를

이론적으로 구하면 1.29 cm/sec이다. 실제 실험결과는 아래 그림에서 알 수 있듯이 용융염 배출밸브를 여는 시간 1 초당 ~1.0 cm 높이의 용융염 펠렛이 제조되었다. 이론치와 실측치간의 다소의 차이는 contraction coefficient를 0.62로 설정한 것과 밸브 개폐과정에서 노즐 면적이 변화하는 데에 기인하는 것으로 유추된다. 펠렛 가운데가 오목하게 파인 것은 냉각시 바깥 부분과 안쪽 부분의 온도차에 기인하며, 용융염 취급성에는 문제가 되지 않을 것이다.

수 차례 실험을 수행한 결과 염배출 밸브(stopper)를 닫았음에도 불구하고 노즐에서의 염 누출이 관찰되었다. 그 원인으로는 불순물에 의한 밸브면의 손상 또는 고온 용융염과 접촉한 밸브와 노즐 부위에서의 부식 발생을 들 수 있다. 노즐에서의 염 누출을 최소화하고자 Fig. 4에 나타낸 것과 같이 용융염 배출밸브(stopper) 하단에 needle을 용접하여 붙이는 방법을 도출하였다. 노즐과 needle 사이의 틈새는 열팽창을 고려하여 0.2 mm로 하였다. 만일 밸브의 손상에 의하여 염누출이 발생하더라도 needle이 노즐의 대부분을 막고 있으므로 그 양은 최소화될 것이다. 용융염 배출시에는 needle은 용융염 배출밸브와 함께 상승되어 노즐에서 완전히 빠지게 된다.

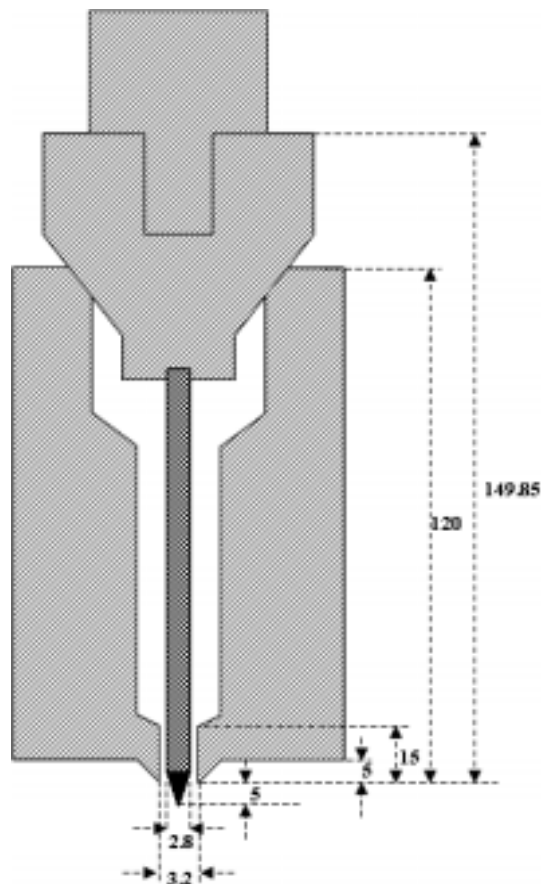


Fig. 4. The molten salt discharge valve equipped with a needle.

650 °C 고온의 혼합용융염이 상온의 염펠렛 제조틀과 받침대에 접촉하는 순간 염이 튀어 혼합용융염 배출밸브가 막히는 현상이 발생하였다. 이 현상을 방지하기 위한 방법으로는 두 가지가 고려되었다. 첫째는 받침대에 부딪치게 되는 용융염의 운동에너지를 감소시키는 것이고, 두번째는 제조틀과 받침대를 가열하여 고온의 용융염이 급작스럽게 냉각됨으로써 튀는 현상을 방지하는 것이다. 이에 대해 상술하자면 다음과 같다.

베셀 내 용융염 액위면 높이 h_1 이 ~0.47 m일 때, 앞서 기술한 대로 노즐에서 배출되는 용융염의 속도 V_2 는 1.9 m/sec이다. 그런데 받침대에 부딪치는 용융염의 종단속도를 V , 노즐과 받침대간의 거리를 h 라고 하면 종단속도는 아래 식에 의해서 계산 가능하다. 예를 들어 V_2 가 1.9 m/sec이고 h 가 0.5 m이면, 종단속도 V 는 3.7 m/sec가 된다.

$$V = \sqrt{V_2^2 + 2gh}$$

따라서 노즐부분의 온도를 염의 용융점 이상으로 유지하면서 노즐과 받침대간의 거리 h 를 최소화하여 염이 받침대에 충돌하는 운동량을 최소화하여야 한다. 후술할 제조틀과 받침대를 가열하는 방법과 병행할 경우, 노즐과 받침대간의 거리 h 를 0.12 m 이내로 하면 염이 튀는 현상을 방지할 수 있음을 실험적으로 관찰하였다. 이때 V_2 가 1.9 m/sec이면 염의 종단속도 V 는 2.4 m/sec가 된다.

염펠렛 제조틀과 받침대를 가열함으로써 염이 받침대에 충돌할 때의 반발계수를 감소시킬 수 있다. 즉, 온도차와 비례하여 반발계수가 커지므로 염이 제조틀과 받침대에 달라붙지 않아야 한다는 제한조건하에서 염펠렛 제조틀과 받침대를 최대한 가열하여야 한다. 실험적으로 가열온도를 변화시키면서 염이 튀는 현상을 관찰한 결과, 염펠렛 제조틀과 받침대의 온도가 80 °C 이상일 때는 염이 튀지 않으면서도 제조틀과 받침대에 달라붙지 않음을 확인하였다. 이에 용융염을 받는 염펠렛 제조틀과 받침대를 국부적으로 가열할 수 있도록 장치를 수정하여 염펠렛 제조실험을 수행하였으며, 가열최적 온도는 실험오차를 감안하여 90 °C로 설정하였다.

본 50 kg LiCl/batch 규모 펠렛 제조장치에서는 표준적으로는 $\Phi 30$ mm \times 30 mmH의 펠렛을 제조하고자 하였다. 이 경우 펠렛의 무게는 ~30 g이며, 펠렛 하나를 제조하는데 용융염 배출밸브 개폐와 펠렛 냉각 그리고 제조틀의 수평이동에 15 초가 소요되었다. 따라서 본 50 kg LiCl/batch 규모 펠렛 제조장치에서는 50 kg의 폐용융염을 취급성이 향상된 펠렛 형태로 7 시간 내에 제조할 수 있다.

4. 결론

사용후핵연료 전해환원공정의 반응매질로 사용되는 LiCl-Li₂O 용융염을 전해환원 공정 장치로부터 감압이송한 다음 취급이 간편한 형태로 고화시키는 용융염 펠렛 제조개념을

도출하고, 연속회전식 고화법으로 다양한 크기의 원기둥 형태로 고화시킬 수 있는 50 kg LiCl/batch 규모의 용융염 펠릿 제조장치를 설계/제작하였다. 성능평가 수행을 통하여 공정변수 분석과 아울러 ACP 공정의 핫셀실증에 적용될 장치의 설계 자료를 확보할 수 있었다.

감사의 글

본 논문은 과학기술부의 원자력 중장기 연구개발 사업의 일환으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

5. 참고문헌

1. J. M. Hur, C. S. Seo, S. S. Hong, D. S. Kang, and S. W. Park, "Metallization of U_3O_8 via Catalytic Electrochemical Reduction with Li_2O in LiCl Molten Salt", *React. Kinet. Catal. Lett.*, **80**, 217 (2003).
2. 오승철, 서중석, 허진목, 박성원, "A Study on the Electrolytic Reduction Mechanism of Uranium Oxide in a LiCl- Li_2O Molten Salt", *한국방사성폐기물학회지* **1(1)**, 25 (2003).
3. 오승철, 허진목, 서중석, 홍순석, 이원경, 박성원, "5kg U_3O_8 /Batch Scale Mock-up Test for the Electrochemical Reduction of Spent Oxide Fuel" *한국방사성폐기물학회지* **1(1)**, 47 (2003).
4. E. A. Smithells, "Metals Reference Book", Butterworths, London & Boston, 1967.