

중저준위화 Pyro 공정에서 잔류 TRU 회수 농도 수치 계산

이성용¹ · 이보안¹ · 김 신^{1,2*}

¹ 제주대학교 에너지공학과, 제주특별자치도 제주시
제주대학로 102

² 제주대학교 원자력과학기술연구소, 제주특별자치도
제주시 제주대학로 102

Numerical Calculation of Residual TRU Recovery Concentration in Conversion of Pyro-processing HLW into LLW

Sung Yong Lee¹, Bo An Lee¹
and Sin Kim^{1,2*}

¹Dept. of Nuclear and Energy Engineering, Jeju
National University, 1 Ara-dong 1, Jeju

²Institute for Nuclear Science and Technology, Jeju
National University, 1 Ara-dong 1, Jeju

초 록

사용 후 핵연료는 안전 및 핵확산 저항성이 보장되어야 한다. 이러한 문제점으로 인해 장수명 핵종의 소멸처리를 위해서는 분리 공정이 필요한데 이 분리 공정중의 하나인 파이로 프로세싱이 있다. 파이로 프로세싱 공정 중 장수명 핵종을 추가로 환원 추출하기 위한 공정이 필요한데 이때 환원 추출되는 양은 용융염과 액체금속의 유동 양상에 따라 결정된다. 따라서 수치해석 프로그램의 Phase field 방법으로 용융염과 액체금속의 혼합 유동을 모사하고 화학종 수송 반응 문제를 연동하여 격납 용기의 구조 및 유동 형태와 주입 속도에 따른 회수 농도를 비교 분석 하였다.

Key words : Pyroprocessing, Recovery, Molten salt, Liquid metal, Phase field, COMSOL Multiphysics

서 론

사용 후 핵연료 구성비의 대부분을 차지하는 우라늄은 순수하게 분리되었을 경우 자연계에 존재하는 우라늄과 방사능이 비슷하기 때문에 저준위 폐기물(Low Level Waste, LLW)로 처리될 수 있으며 고속로(Fast Reactor, FR)가 상용화될 경우 238U 역시 에너지원으로 사용될 수 있다. 또한 사용 후 핵연료에 존재하는 플루토늄 역시 핵분열을 일으킬 수 있는 물질이기 때문에 사용 후 핵연료는 이제 더 이상 폐기물이 아니라 에너지 자원으로 인식되고 있다. 또한, 원자로에서 배출된 사용 후 핵연료는 안전한 관리가 요구되고 핵확산 저항성도 보장돼야 한다. 따라서 사용 후 핵연료의 처리, 처분에 대한 방안은 여전히 큰 미해결 과제로 남아 있어 이에 대한 기초 연구가 절실한 상황이다.

장수명 핵종의 소멸 처리를 위해서는 장수명 핵종을 분리한 뒤 연료로 제조하여야 한다. 분리 공정은 크게 습식 공정과 건식 공정(Pyrochemical process 또는 Pyro processing)으로 나뉘는데 용융염을 사용하는 건식 공정은 습식 공정에 비해 2차 방사성 폐기물의 발생량이 적고 공정이 간단하며, 핵확산에 대한 저항성이 매우 크고 제 4세대 원자로로 고려되는 고속로의 핵연료 주기 등에도 여러 가지 이점을 갖고 있어 미래의 핵주기 기술로 주목받고 있다[1, 2].

소멸 처리로의 연료를 제조하기 위해서는 분리된 장수명 핵종들을 추가로 정제하는 과정이 필요하며, 전해 분리된 TRU(Transuranic) 성분을 추가로 정제하기 위해 TRU 함유 용융염을 액체금속과 접촉 시키는 환원 추출 공정이 이용된다[3]. 이 때, TRU 성분이 회수되는 과정 중 TRU가 포함된 용융염과 액체금속의 유동 양상에 따라 환원 추출되는 TRU의 양이 결정된다. 따라서 환원 추출법 Pyro 공정 개발을 위한 기반 기술로서 액체금속과 용융염의 접촉계면을 통한 물질전달을 최적화할 수 있는 방법론 개발이 필요하다.

본 연구에서는 시간에 따른 Pyro 공정의 용융염과 액

* E-mail : sinkim@jejunu.ac.kr

체금속의 유동에 따른 TRU 회수 농도를 COMSOL Multiphysics의 Phase field method와 화학종 수송 반응 문제를 연동하여 시뮬레이션 하였고, 두 유체의 확산 계수에 따라 TRU의 회수 농도를 계산 하였다.

수치계산 방법

액체금속과 용융염의 유동 양상에 따른 TRU 회수율을 계산하기 위하여 COMSOL Multiphysics 4.0a를 이용하여 수치 계산하였다. COMSOL Multiphysics는 유한요소법(finite element method, FEM) 기반으로 편미분 방정식으로 구현되는 물리현상을 시뮬레이션 할 수 있는 모델링 패키지 소프트웨어로 다중 물리식을 연동하여 복합 물리 모델을 쉽게 구현하여 계산할 수 있다. 본 연구에서는 이상유체 경계문제를 모델링하기 위해 CFD 모듈의 Phase field 방법을 사용하였고, 난류 모델로는 $k-\epsilon$ 모델을 사용하였다. 유동양상에 따른 회수율을 계산하기 위해 화학공학 모듈의 화학종 수송 반응 문제를 연동하여 계산 하였다.

Phase field 방법은 이상유체 문제와 같이 계면이 존재하는 문제를 풀기 위한 수학 모델중 하나로 계면에서 경계조건을 명시적으로 나타내지 않고서도 계면 문제를 풀 수 있다는 장점이 있다.

유동장에 대한 Navier-Stokes 식은 다음과 같이 표현 된다.

$$\rho \frac{\partial U}{\partial t} + \rho(U \cdot \nabla)U = \nabla \cdot [-pI + (\nabla U + (\nabla U)^T)] + \rho g \quad (1)$$

$$\nabla \cdot U = 0 \quad (2)$$

$$\rho \frac{\partial k}{\partial t} + \rho(U \cdot \nabla)k = \nabla \cdot [(\eta + \eta_T/\sigma_k)\nabla k] + \eta_T P(U) - \rho \epsilon \quad (3)$$

$$\rho \frac{\partial \epsilon}{\partial t} + \rho(U \cdot \nabla)\epsilon = \nabla \cdot [(\eta + \eta_T/\sigma_\epsilon)\nabla \epsilon] + C_{1\epsilon}\eta_T P(U)/k - c_{2\epsilon}\rho \epsilon^2/k \quad (4)$$

여기서

$$P(U) = (\nabla U) : (\nabla U + (\nabla U)^T) \quad (5)$$

$$\eta_T = \rho C_\mu k^2/\epsilon \quad (6)$$

여기서 $U(m/s)$ 는 유체의 평균속도(Average fluid velocity)이고 $\rho(kg/m^3)$ 는 유체의 밀도(Density)이다.

그리고 $\eta(N \cdot s/m^2)$ 는 점성도(viscosity)를 나타내고, $k(m^2/s^2)$ 는 난류운동에너지(turbulent kinetic energy) $\epsilon(m^2/s^3)$ 은 난류소산율(turbulent dissipation rate)을 나타낸다.

이상유체 유동의 경계는 Cahn-Hilliard 방정식으로 부터 쪼개진 2차편미분 방정식으로 다음과 같이 표현된다.

$$\psi = -\nabla \cdot \epsilon^2 \nabla \phi + (\phi^2 - 1)\phi + \frac{\epsilon_i^2}{\lambda} \frac{\partial f}{\partial \phi} \quad (7)$$

$$-\frac{\partial \phi}{\partial t} + U \cdot \nabla \phi = \nabla \cdot \frac{\gamma \lambda}{\epsilon^2} \nabla \psi \quad (8)$$

$$\lambda = \frac{3\epsilon_i \sigma}{2\sqrt{2}} \quad (9)$$

$$\gamma = \chi \epsilon_i^2 \quad (10)$$

여기서 ϕ 는 무차원 phase field 변수로 1 또는 -1의 값을 가진다. $\vec{u}(m/s)$ 는 유체의 속도, $\lambda(N)$ 는 mixing energy density, $\epsilon_i(m)$ 는 capillary width로 phase field 방법에서 가장 중요한 인자 중 하나로 경계두께를 결정한다. $f(J/m^3)$ 는 자유에너지로서 일반적으로 $\frac{\partial f}{\partial \phi}$ 는 대부분의 경우 0으로 설정된다. $\gamma(m^3/kg)$ 는 이동도로서 Cahn-Hilliard 확산 시간 척도를 결정하고, $\sigma(N/m)$ 는 표면 장력 계수이다.

이상 유체의 유동 양상에 따른 대류 확산 물질전달 현상을 해석하기 위해 phase field 방법과 화학종 수송 반응 문제(chemical species transport interface)를 연동(coupling)하여 계산 하였다. 대류 항에 대한 관계식은 다음 식과 같이 표현 된다.

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla c = \nabla \cdot (D \nabla c) \quad (11)$$

여기서 $c(mol/m^3)$ 는 농도이고, $D(m^2/s)$ 는 확산 계수(diffusion coefficient)이다. $\mathbf{u}(m/s)$ 는 속도 벡터를 의미한다. phase field 방법의 경계 문제와 화학종 수송 반응 문제를 연동하기 위한 변수는 유체의 속도이다.

수치계산 결과

대류 확산 물질전달을 해석하기 위해 Fig. 1에 보이는 것과 같이 수조를 높이 0.2m, 너비 0.2m의 평판형과 원통형 수조를 symmetry 및 axisymmetry의 형태로 구성하여 수치계산을 수행하였다. 수조 상부가 U_{in} (m/s)의 속도로 유체가 주입되는 inlet 이고, 수조의 둘레와 하단부가 압력 $P=0$ (Pa)의 조건으로 outlet이다. 계산 유체 중 용융염은 KCl, 액체금속의 경우는 Bi를 사용하였다. 용융염 및 액체금속의 물성치는 Tohoku molten salt DB(<http://ras.material.tohoku.ac.jp/~molten/>)와 국가 지정 기계공학 연구정보센터 DB (<http://www.metric.or.kr>)를 통해 얻었다. 각각의 물리 상수 값은 다음 Table 1에 나타내었다. 표에서 용융염과 액체금속간의 surface tension coefficient는 알려진 바가 없어 두 액체상태의 대표적인 값인 물과 기름간의 surface tension coefficient와 같다고 가정하고, 주입 유체에 포함된 TRU의 농도는 1 mol/m^3 로 설정하고 계산 하였다.

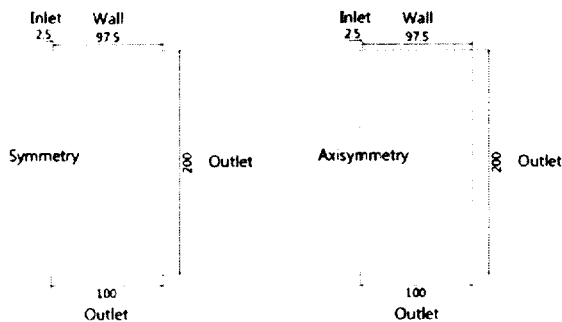


Figure 1. Geometry of the tank

Table 1. Physical properties of molten salt and liquid metal

	KCl (Molten salt)	Bi (Liquid metal)
Density (ρ)	1522 kg/m^3	9510 kg/m^3
Dynamic viscosity (μ)	1.054847 $\text{Pa} \cdot \text{s}$	0.83E-3 $\text{Pa} \cdot \text{s}$
Diffusion coefficient (D)	2.445E-7 m^2/s	1.01E-5 m^2/s
Surface tension coefficient (σ)	0.02 N/m	

1. 평판형 (층류)

Fig. 2와 3은 평판형 구조를 갖는 층류 시스템에서 액체금속이 0.1m/s로 주입되는 경우에 대한 유동양상과 농도 변화 및 회수 농도를 보여준다. Fig. 2와 4의 유동양상을 살펴보면 동점성계수가 높은 용융염이 주입될 경우 점성에 의한 영향으로 물방울 형태의 모양으로 주입되는 모습을 볼 수 있다. Fig. 3에서 삼각형 심볼의 선은 시스템 영역 전체의 농도 변화율을 나타내고 사각형 심볼 선은 용융염 영역에서의 회수 농도 변화를 나타낸다. 예상했던 바와 같이 시간이 경과함에 따라 시스템 전체의 농도가 선형적으로 증가하고 이에 비례하여 회수 농도도 증가함을 알 수 있다.

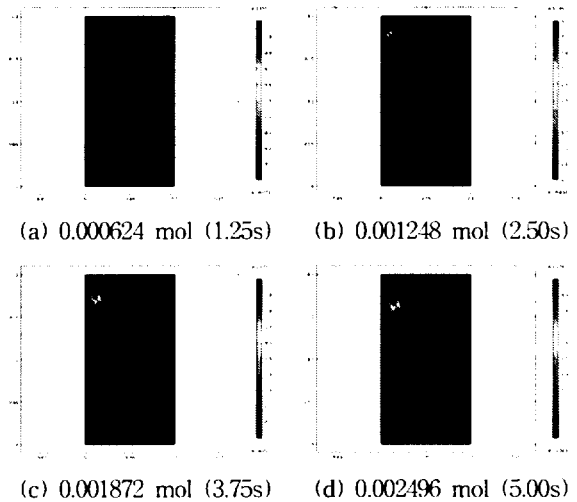


Figure 2. 평판에서 액체금속의 주입속도가 0.1m/s 인 경우 유동 양상(층류)

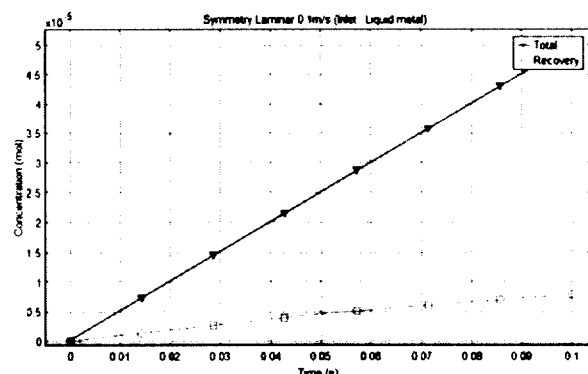


Figure 3. 평판에서 액체금속의 주입속도가 0.1m/s 인 경우 회수 농도(층류)

Fig. 4 및 5는 액체 금속이 0.5m/s로 주입되는 경우에 대한 결과를 보여준다. 0.1m/s로 주입되는 경우와 비교

로부터 주입 속도가 증가함에 따라 확산 현상이 급격하게 일어나고, 이에 따라 회수 농도도 다소 증가하는 경향을 알 수 있다.

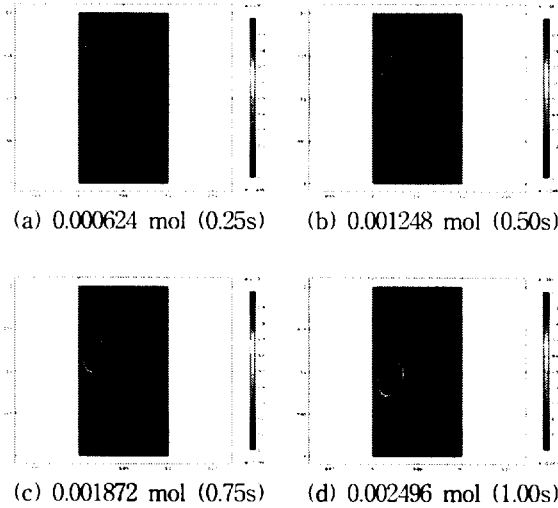


Figure 4. 평판에서 액체금속의 주입속도가 0.5m/s 인 경우 유동 양상(총류)

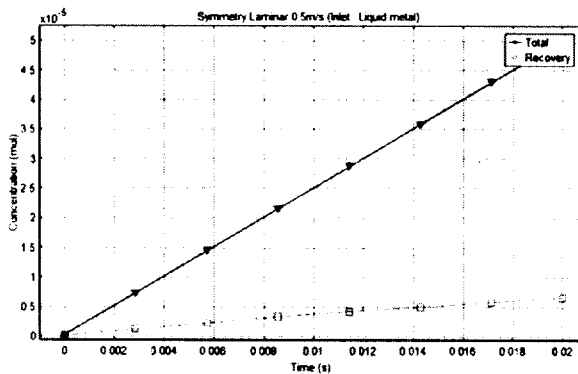


Figure 5. 평판에서 액체금속의 주입속도가 0.5m/s 인 경우 회수 농도(총류)

Fig. 6과 7은 액체금속이 1.0m/s의 속도로 주입 될 때의 결과이다. 이 경우에는 속도의 증가로 인해 앞서 언급했던 액체금속이 0.1m/s, 0.5m/s의 속도로 주입되는 경우보다 회수율이 다소 증가하는 추이를 보여준다.

이와는 반대로 Fig. 8~13은 용융염이 0.1m/s, 0.5m/s, 1.0m/s로 주입될 때의 결과로 앞선 결과들과 유사한 경향을 보임을 알 수 있다. 따라서 평판형 총류 유동에서 시간의 경과에 따라 시스템 전체의 농도 변화 및 회수 농도가 선형적으로 증가하고 주입 유체의 속도가 증가함에 따라 회수 농도도 다소 증가하는 경향을 보인다고 할 수 있다.

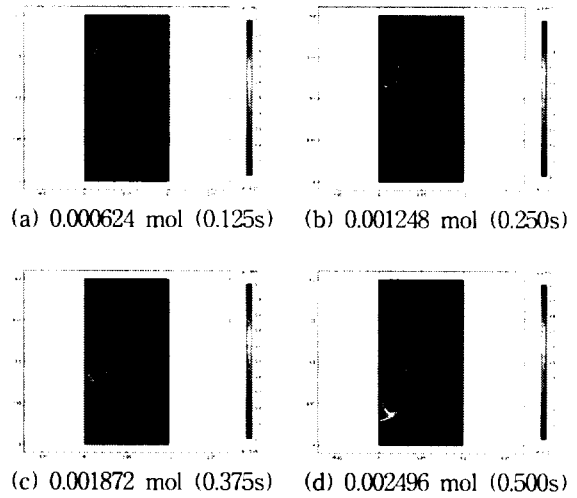


Figure 6. 평판에서 액체금속의 주입속도가 1.0m/s 인 경우 유동 양상(총류)

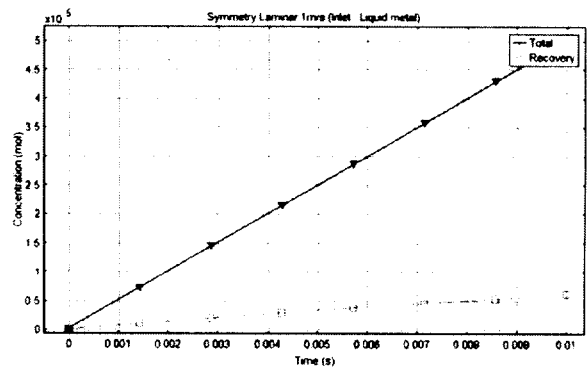


Figure 7. 평판에서 액체금속의 주입속도가 1.0m/s 인 경우 회수 농도(총류)

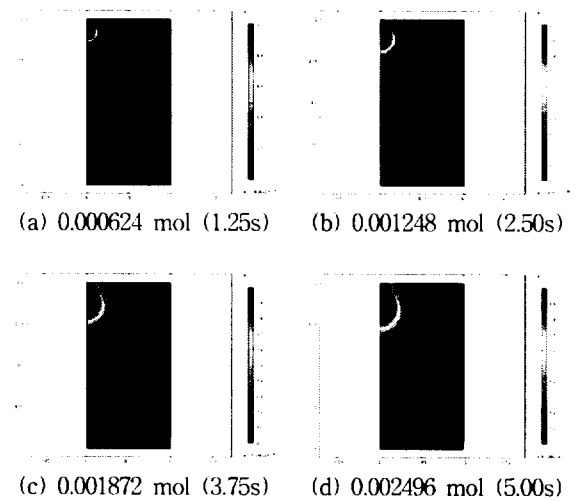


Figure 8. 평판에서 용융염의 주입속도가 0.1m/s 인 경우 유동 양상(총류)