

제 3 장 우라늄 동위원소 분리

한국교통대학교 화공생물공학과 박병홍

우라늄 동위원소 분리는 맨하튼계획을 통해 개발된 기체확산법이 핵에너지의 평화적 이용이 본격화됨에 따라 대규모의 공장이 이 공정으로 건설되었으며 아직까지도 전 세계의 저농축 우라늄 수요의 대부분이 이 방식에 의해서 주로 공급되고 있다. 이 밖에도 원심분리법, 질량확산법, 열확산법 및 공기 역학에 의한 방법 등이 있으며, 요즘은 레이저방법이 개발되면서, 우라늄 동위원소 분리의 새로운 가능성으로 각광을 받고 있다.

3.1. 기체확산법

기체확산법의 원리는 두 기체 또는 동위원소의 화합물이 어떤 밀폐된 용기 내에 존재하고 있을 때 기체분자가 갖는 운동에너지는 $E=1/2Mv^2$ 이며 통계적으로 이 값은 동일하므로, 가벼운 성분의 기체 분자들의 평균 운동 속도가 무거운 기체분자보다 크다는 성질을 이용하여 서로 다른 원소들을 분리하는 방식이다(그림 3.1).

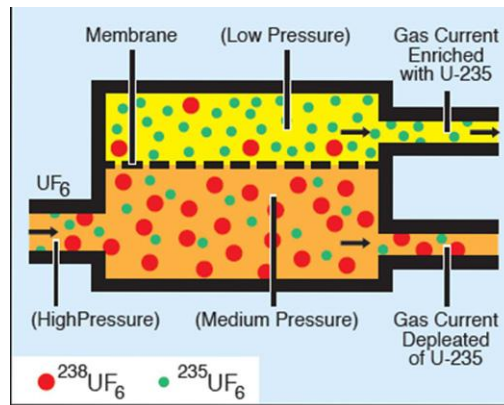


그림 3.1 UF₆ 기체확산법

예를 들어 밀폐된 용기벽에 작은 구멍이 있고, 온도가 평형을 유지할 때 용기내부의 기체 압력 P_f 와 외부 압력 P_b ($P_f > P_b$)가 매우 낮아 구멍의 주변에서 분자들끼리 서로 상호 아무런 충돌이 없다고 하면 분자들은 그 구멍을 통하여 독립적으로 확산한다. 확산되는 i 번째 성분의 기체의 양은 구멍의 단면적 S 를 통과하는 분자수의 차이와 같다. 이와 같은 현상을 이상 기체법칙을 적용하여 수식화하면 다음과 같이 표시할 수 있다.

$$J_i S = V_i S (n_{if} - n_{ib}) / 4 = V_i S (P_{if} - P_{ib}) / 4RT$$

여기서 R 은 기체상수, $n = \sum n_i$ 는 전체 분자의 밀도, $n_i = n N_i$ 는 분자의 부분밀도, N_i 는 몰 분율, $P_i = P N_i$ 는 부분압, v_i 는 혼합기체의 i 번째 성분의 Maxwell 평균 속도이며 다음과 같다.

$$V_i = (8RT/\pi M_i)^{1/2}$$

$P_b=0$ 에서 두 성분의 기체 분자량 $M_1, M_2(M_2>M_1)$ 이 $N_1=y, N_2=(1-y)$ 의 비율로 혼합되어 있고, 용기 내부의 몰 분율이 x 와 $(1-x)$ 라고 하면 용기의 구멍을 통하여 확산되는 혼합기체의 몰 분율의 비율은 분자 분출량의 비율과 같다. 즉,

$$\frac{y}{1-y} = \frac{J_1}{J_2} = \frac{V_1 P_{1f}}{V_2 P_{2f}} = \left[\frac{M_2}{M_1} \right]^{1/2} \frac{x}{(1-x)}$$

위 식들을 정리하면 분리계수는 다음과 같이 표시된다.

$$\alpha = \frac{y/(1-y)}{x/(1-x)} = (M_2/M_1)^{1/2}$$

우라늄 동위원소 분리의 경우 UF_6 를 기체 분자로 이용하므로 기체확산법에 의한 분리계수 α 는

$$\alpha = (M_2/M_1)^{1/2} = ({}^{238}UF_6/{}^{235}UF_6)^{1/2} = (352/349)^{1/2} = 1.00429$$

이고 α 가 거의 1에 가깝기 때문에 목적하는 조성의 동위원소 물질을 얻으려면 여러 단계의 캐스케이드 작업이 필요함을 알 수 있다. 실제의 경우 5%의 농축 우라늄을 얻기 위해서는 천연 우라늄을 원료로 하여 약 900단위 반복 작업이 필요하며 캐스케이드 공정으로는 회수부 및 농축부를 포함하여 대략 1,500단이 소요된다.

기체 분자의 상호 충돌이 무시될 수 있을 정도로 압력이 낮은 상태에서의 기체의 흐름을 분자류(molecular flow)라고 하고, 어떤 기체 분자가 다른 기체 분자와 처음 충돌한 후부터 또 다른 기체 분자와 충돌하기까지의 거리의 평균을 평균 자유 행로라 한다. 그러므로 평균 자유 행로보다 직경이 작은 파이프에 기체 분자를 밀어 넣으면 그 기체 분자는 다른 기체 분자와 충돌하기 전에 파이프 벽에 충돌하기 때문에 다른 기체 분자에 어떠한 영향도 미치지 않고 기체분자의 고유속도로 파이프를 통과한다.

우라늄 동위원소 분리에 사용되는 UF_6 기체는 상온에서는 고체이며, 고체, 액체 및 기체의 삼중점이 1137 Torr, 64°C에 있으므로, 1기압보다 낮은 약간 고온의 기체 상태로서 사용된다. 또한 UF_6 는 화학적 활성이 높은 부식성 기체이므로, 격막의 재료로는 니켈, 알루미늄 혹은 폴리사불화 에칠렌 등이 사용되고 있다. 그리고 격막을 통과하는 유량을 증대하기 위하여 일정 단면적 내에 다수의 미세공을 형성하여야 하며, 격막 전후의 압력차를 높이기 위하여 충분한 기계적 강도를 유지해야 한다.

고압의 UF_6 기체가 주입되면, 다수의 미세공 격막을 맞게 되며 이것을 통과하여 저압쪽으로 확산한다. 이때 가벼운 U^{235} 분자가 더 많이 통과하여 농축된다. 그러나 이 농축도가 매우 작아 상기 단계를 반복해야 목적하는 조성의 우라늄 동위원소를 얻을 수 있다.

격막을 통과한 UF_6 기체는 압력이 낮아지므로 다음 단으로 주입하기 위해서는 압축기를 거쳐야 한다. 압축기를 통하면 다음 단으로의 주입 압력은 높아지지만, UF_6 기체를 압축시킬 때 기체의 단열 압축에 의한 발열로 압축기의 다음 공정에 필히 냉각기를 부착시켜야 한다.

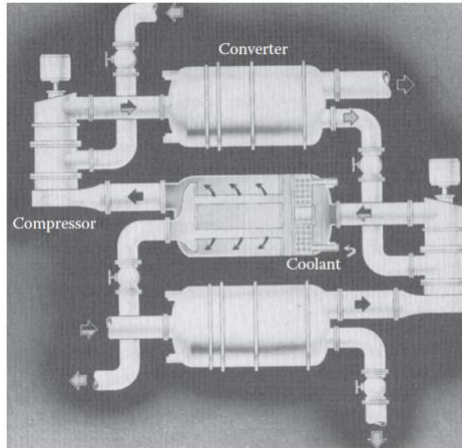


그림 3.2 기체확산법의 분리단 배열

3.2. 원심분리법

원심분리법에 의한 우라늄 동위원소분리는 1941년의 Beams 등에 의해서 처음 시도된 후, 유럽 URENCO에서 소규모로 상업운전을 하고 있다. 미국은 제2차 세계대전 중 원자무기를 개발하는데 필요한 농축 우라늄을 얻기 위하여 대규모로 연구하다, 분리 능력이 저조하고 기계적 장치가 복잡하여 큰 진전은 보지 못했으며 경제성이 좋은 것으로 기대되는 레이저법을 실증하면서 이에 대한 연구는 거의 중지된 상태에 있다.

원심분리법의 기본 원리로는 회전용기 내부에 있는 기체가 원통과 함께 고속회전을 하여 회전용기 중심으로부터 바깥 방향으로 지구의 인력의 수만 배에 달하는 원심력이 작용하여, 기체의 밀도가 중심부에는 희박해지고, 바깥쪽에는 압착된 모양의 분포를 형성하여 바깥쪽에는 U^{238} 의 비율이 높아지고, 중심부에는 U^{235} 의 비율이 높아져 우라늄 동위원소를 분리하는 방법이다(그림 3.3).

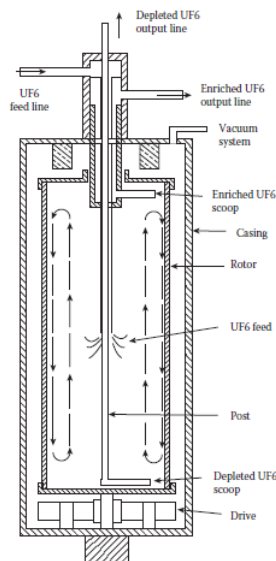


그림 3.3 원심분리기

회전용기와 동일한 각속도 w 로 균일하게 회전하여, 다른 운동을 하지 않는 등온 기체를 생각하

면, 회전용기를 중심축으로 하는 원통 좌표 계에서 반경 r방향의 기체 압력구배는 다음과 같이 주어진다.

$$dp/dr = w^2 r \rho$$

여기서 P는 압력이고, ρ는 기체의 밀도이다. 식 (8. 38)에 이상기체 법칙을 이용하면

$$(1/p)(dp/dr) = (Mw^2r/RT)$$

이고, r=r에서 r=a까지 적분하면 다음과 같다.

$$\frac{P(r)}{P_a} = \frac{\rho(r)}{\rho_a} = \exp \left[-\frac{M V_a^2}{2RT} \left(1 - \frac{r^2}{a^2} \right) \right]$$

여기서, a는 원심분리기의 외부 벽까지의 반경이고, V_a는 회전속도로 V_a=wa를 의미한다. 분자의 질량이 M₁, M₂인 두 기체가 혼합되어 있다고 가정하면 각 성분의 부분압의 비는 다음과 같이 정리된다.

$$\frac{P_x}{P_a X_a} = \exp \left[-\frac{M_1 V_a^2}{2RT} \left(1 - \frac{r^2}{a^2} \right) \right]$$

$$\frac{P(1-X)}{P_a(1-X_a)} = \exp \left[-\frac{M_2 V_a^2}{2RT} \left(1 - \frac{r^2}{a^2} \right) \right]$$

이때의 x는 가벼운 성분의 몰분율이다.

정의에 의해서 이론적인 분리계수 α를 구하면 다음과 같다.

$$\alpha(a, r) = \frac{X/(1-X)}{X_a/(1-X_a)} = \exp \left[\frac{(M_2-M_1)V_a^2}{2RT} \left(1 - \frac{r^2}{a^2} \right) \right]$$

근사적으로 α는 기체확산법의 경우 질량비의 1/2승에 비례하는데 반해, 원심분리법의 경우에는 질량 차이에 관계하기 때문에 분리계수가 전자 방식보다는 대단히 크며, 무거운 원소들의 동위원소분리에 보다 적합함을 알 수 있다.

회전속도가 높아짐에 따라서 중심축과 회전용기 외벽과의 압력차가 커지므로 압력 분포를 흘트리 지 않으면서 UF₆ 기체를 공급하거나 분리하는 것이 매우 어렵다. 그러므로 이를 보완하기 위한 원심분리기의 급, 배식 방식으로는 Groth 방식, Zippe 방식 등이 개발되었다.

원심분리에 대한 Cohen 해석에 따르면, 농도구배가 존재하는 원심력장에서 기체분자의 확산이동을 계산한 결과 단위길이당 이론적 최대 분리능은 다음과 같다.

$$\left[\frac{d\Delta}{dz} \right]_{\max} = \frac{\pi D \rho (M_1 - M_2)^2 V_a^4}{8RT}$$

이 해석에 의하면, 최대분리능은 회전속도 V_a의 4승에 비례하는 것으로 나타난다. 그러나 UF₆ 기체의 주입, 배기 및 순환 형태에 대한 보다 상세한 분석이 Berman 등에 의하여 이루어졌으며,

현실적으로는 향류형 원심분리기내에 있어서의 축방향 흐름 형태에 따라 유형효율 E_F 와 순환효율 E_C 를 고려하여 다음 식과 같은 최대 분리능으로 나타낸다고 제시하였다.

$$\left[\frac{d\Delta}{dz}\right]_{\max} = \frac{\pi D \rho (M_1 - M_2)^2 v_a^4}{8(RT)^2} E_F E_C$$

$$E_F = 4I_1^2 / I_3$$

$$E_C = \frac{1}{1 + [8(\pi D \rho a)^2 / N^2] [f(r_1/a)]^2 / 4I_3}$$

일반적으로 일정 형식의 원심분리기에서는 공급유량을 증가시키면 단 분리계수는 감소하고, 유량을 0으로 하면 단 분리계수는 평형치로 되지만 분리 작업이 없는 원심분리기가 되므로 의미가 없다. 이로부터 원심분리기 한대당의 분리능은 어느 점에서 극대점을 갖는 곡선임을 알 수 있다. 그러므로 원심분리기의 각 구조 형태마다 운전 조건의 최적치를 찾아나가야 한다.

또한 원심분리법에서는 회전용기의 회전속도를 높이는 것이 바람직하므로, 이에 대한 적당한 재료 개발이 병행되어야 기체확산법에 비하여 훨씬 큰 단 분리 계수를 얻을 수 있다.

예를 들어 천연 우라늄으로부터 5%의 농축 우라늄을 생산하는데 요하는 기체확산법의 캐스케이드 단수는 농축부에서 약 900여단이 필요한데 반하여 400m/sec급의 원심분리기에서는 약 27단이면 족하고, 그 이상의 고속 원심분리에서는 소요 단수가 더 적어진다. 그러나 한대 당 원심분리기에서 공급되는 양은 회전용기 내 기체유동에 관한 유체 역학적 제한이나 분리능과 유량 관계로 목적하는 조성을 얻는데 수만 또는 수십만 대의 원심분리기가 필요한 경우가 있으므로 이 방법에 의한 우라늄 동위원소 분리의 성공 여부는 원심분리기의 대당 제작비 절감 및 고속회전 원심분리기의 관리 능력과 보수 유지방법 등의 향상에 있다.

3.3 공기 역학에 의한 방법

흐르는 혼합 기체가 큰 선형적인 힘이나 원심력을 받아 동위원소 성분에 변화가 일어나 동위원소를 분리하는 방법을 공기역학법이라고 부르며, 이 방법에는 노즐법과 남아프리카 농축회사에서 개발한 UCOR 공정 등 크게 2가지 공정이 있으나, 보다 일반적인 노즐법에 대해서 간략히 설명하면 다음과 같다.

노즐분리법은 그림 3.4에서 나타낸 바와 같이 공급 기체를 반원형의 곡면벽에 따라 주입하면 원심력 차이 때문에 무거운 성분의 물질이 벽 쪽으로 붙어서 흐르게 되므로, 이 흐름을 적당한 위치에 놓은 knife edge에 의해서 분리하는 방법으로 독일에서 준 공업적 규모의 연구개발이 진행되고 있다.

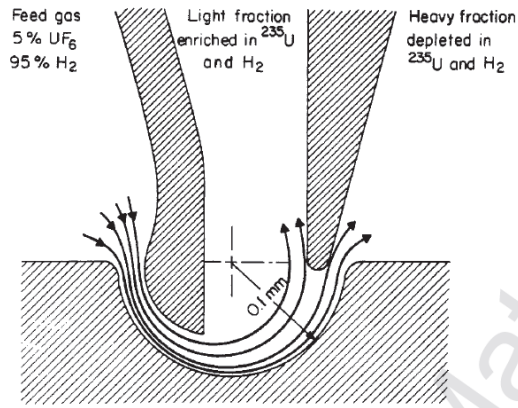


그림 3.4 노즐분리법

원심분리법에서와 같이 반경 r 에서 가벼운 성분의 밀도분포는

$$\rho_1(r) = \rho_1(0) \exp\left(\frac{M_1 w^2 r^2}{2RT'}\right)$$

이고, $\rho_1(0)$ 은 $r=0$ 에서 분자량 M_1 에 대한 성분(1)의 밀도분포이며, 분자량 M_2 에 대한 성분(2)의 밀도 분포는 다음과 같다.

$$\rho_2(r) = \rho_2(0) \exp\left(\frac{M_2 w^2 r^2}{2RT'}\right)$$

만약 knife edge가 $r=c$ 에서 고정 된다면 단위길이당 가벼운 성분내의 성분(1) 및 성분(2) 유량은

$$\Omega_1 = \int_0^c wr\rho_1(r)dr = \frac{RT'\rho_1(0)}{M_1w} \left[\exp\left(\frac{M_1w^2c^2}{2RT'}\right) - 1 \right]$$

$$\Omega_2 = \int_0^c wr\rho_2(r)dr = \frac{RT'\rho_2(0)}{M_2w} \left[\exp\left(\frac{M_2w^2c^2}{2RT'}\right) - 1 \right]$$

이고, 반경 $r=c$ 에서 $r=a$ 사이의 무거운 성분내의 성분(1) 및 성분(2)의 유량은 다음과 같이 표시된다.

$$\pi_1 = \int_c^a wr\rho_1(r)dr = \frac{RT'\rho_1(0)}{M_1w} \left[\exp\left(\frac{M_1w^2a^2}{2RT'}\right) - \exp\left(\frac{M_1w^2c^2}{2RT'}\right) \right]$$

$$\pi_2 = \int_c^a wr\rho_2(r)dr = \frac{RT'\rho_2(0)}{M_2w} \left[\exp\left(\frac{M_2w^2a^2}{2RT'}\right) - \exp\left(\frac{M_2w^2c^2}{2RT'}\right) \right]$$

여기서 T' 는 절대온도로 노즐을 통하여 속도 v 로 팽창된 후의 온도이다.

$$A^2 = \frac{M^2w^2a^2}{2RT} \text{ 라 두면}$$

저농축의 경우 이고, cut θ 는

$$\theta = \frac{\Omega_2}{\Omega_2 + \pi_2} = \frac{\exp(A^2 C^2 / a^2) - 1}{\exp A^2 - 1}$$

그리고

$$\frac{C^2}{a^2} = 1 + \frac{1}{A^2} \ln[\theta + (1 - \theta) \exp(-A^2)]$$

이므로, 위식과 분리계수의 정의에 의해서 분리계수 α 는 다음과 같다.

$$\alpha = \frac{\pi_2 \Omega_1}{\Omega_2 \pi_1} = \frac{1 - \theta}{\theta} \frac{\Omega_1}{\pi_1} = \frac{1 - \theta}{\theta} \frac{\exp(A^2 C^2 / \alpha_0^2 a^2) - 1}{\exp(A^2 / \alpha_0^2) - \exp(-A^2 C^2 / \alpha_0^2 a^2)}$$

$$(\alpha_0^2 = M_2 / M_1)$$

분리계수 α 값은 기체의 속도가 빠를수록, 그 압력비가 클수록 cut θ 가 작을수록 커지며, 기체확산법의 분리계수 α 보다는 조금 크지만, 전력소모는 기체확산법의 4배가 되며 압력 또한 약 150배 정도가 크다.

일반적으로 노즐분리법에서는 UF₆ 5mol%-H₂ 95mol%의 혼합기체가 많이 사용되며 노즐폭은 0.01mm 정도로 하여 노즐의 전방 및 후방의 진공도를 각각 50 Torr 및 15 Torr 정도로 작동시킨다. 이 경우 분리계수 α 는 약 1.082정도가 얻어진다. 특히 이 방법의 최대 단점인 과대한 동력비 때문에 노즐의 간격을 더욱 적게 하는 즉 노즐 전후의 압력차를 크게 할 수 있는 knife edge의 경제적 가공법이 이 공정 개발의 중요한 문제점이다.

3.4. 열 확산법

열 확산법의 원리는 균일한 성분을 갖는 혼합물에 열을 가하면 작은 확산류가 형성되어, 그에 따라 열의 흐름 방향으로 한 성분의 물질이 이동하고, 다른 성분의 물질은 반대 방향으로 흐르는 열 확산 효과에 의하여 분리하는 방법이다.

열 확산탑의 구조는 환상 형태이며, 분리되어야 할 혼합기체는 내부의 가열부분과 외부의 냉각 부분 사이에 위치하고 있다. 동시에 내부에는 가열된 대류가 형성되며, 역방향의 흐름으로 열 확산 효과가 생성되어 분리가 가능하게 된다.

열 확산법의 분리계수 α 는 다음과 같은 식에서 유도된다.

r방향에 대한 질량속도 J_r 는

$$J_r = -D\rho \left[\frac{\partial y}{\partial r} - \gamma y(1 - y) \frac{\partial \ln T}{\partial r} \right]$$

이고, 여기서 $\sigma y / \sigma r$ 는 농도구배, $\sigma \ln T / \sigma r$ 는 온도구배이며, r 는 열 확산상수이다.

정상상태에서 $J_r = 0$ 로 간주한다면 다음과 같이 재정리 되며

$$(\partial y / \partial r)_{\text{zero transport}} = \gamma y(1 - y) \frac{\partial \ln T}{\partial r}$$

적분하면, 분리계수 α 는 정의에 의해서 다음과 같다.

$$\ln \alpha = \ln \frac{y'(1-y'')}{y''(1-y')} = r \ln \frac{T'}{T''}$$

여기서 T' 는 가열부분의 온도, T'' 은 냉각부분의 온도이다.

열 확산법의 분리에 의한 동위원소 분리는 상당한 진보가 이루어졌지만 부분적으로는 농축된 동위원소의 체류량을 최소화하고 평형 상태에 도달하는 시간을 감소하기 위하여, 확산탑의 점감 캐스케이드(tapered cascade)의 사용이 필요한 경우도 있다. 이 방법은 적은 규모로 우라늄 동위원소를 분리할 수 있는 편리한 방법이지만 많은 에너지가 비효율적으로 소모되기 때문에 대규모로는 적합하지 않다.