

## 반회분식 조작에 의한 AUC 결정화속도에 관한 연구

박명혜·이보성

충남대학교 화학공학과  
(1987년 10월 19일 접수, 1988년 10월 31일 채택)

## Crystallization Rates of AUC by Semi-Batch Operations

Myung Hae Park and Bo Sung Rhee

Dept. of Chem. Eng., Chungnam National Univ.

(Received 19 October 1987; accepted 31 October 1988)

### 요약

Slab형 침전 결정화기에서 반회분식 조업으로 제조되는 AUC[Ammonium Uranyl Carbonate· $(\text{NH}_4)_4 \text{UO}_2 (\text{CO}_3)_3$ ] 침전반응의 반응속도에 대해 연구하였다.

입자수지식을 모멘트 변환하고, 각 순간의 입자 분포의 실험값으로부터 2차 및 유효 핵생성 속도와 결정 성장 속도를 구하였다. 또한 이 속도들을 모액중의 우라늄 농도와 슬러리 농도의 함수로 표시하였다. 특히  $15 \mu\text{m}$  보다 작은 입자들은 입자 밀도가 대단히 컸는데, 이것은 주로 순환 펌프시 충돌에 의해 큰 결정들이 마모된 것으로 볼 수 있었다.

**Abstract**—The crystallization rates of AUC(Ammonium Uranyl Carbonate) by semi-batch operations in the slab-type precipitator were studied.

From the moment transformation of population balance equation and the experimental data of particle size distributions, secondary, effective nucleation and growth rates were obtained. These rate laws were determined as a concentration term of uranium in mother liquor or slurry. Particularly, the population densities of smaller particles than  $15 \mu\text{m}$  were high due to attrition of large particles during circulation by the centrifugal pump.

### 1. 서 론

핵 연료에 사용되는  $\text{UO}_2$  분말의 결정 모양, 입자 분포, 표면 상태 등은 중간재인 AUC(Ammonium Uranyl Carbonate) 분말의 특성에 따라 영향을 많이 받는다[1, 2]. 뿐만 아니라, 분리, 정제 효과에도 영향을 주며, 세척 건조 공정에도 영향을 준다. 그러므로 이러한 특성을 잘 제어하기 위해서 AUC 침전반응에 대한 이해가 필수적이다.

AUC 침전반응은 정제된 UN(Uranyl Nitrate) 용

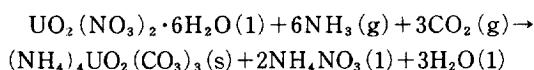
액이나  $\text{UF}_6$ 를 물에 용해시킨  $\text{UO}_2\text{F}_2$  용액에 암모니아와 탄산가스를 반응시켜 황색의 AUC 침전 결정물을 얻는 반응이다. 침전반응 조건에 대한 기초연구로는 Chernyaev 등[3] 외에 다수 있으며[4, 5], 장길상[6] 등은 소규모의 연속식 반응기에서 이루어지는 AUC 침전 결정화속도와 동력학적 특성을 해석한 바 있다. 또한 실제 상용 결정화기에서의 조업은 반회분식으로 진행되고 있으므로 장인순 등[7, 8]은 반회분식 공정에서 나온 AUC 침전반응물의 특성과 공정을 연구하였다. 그러나 반회분식 조업은 시간에 따라 여러 현상이 계속

변하므로 침전 결정화속도나 동력학적 특성에 대한 정량적인 방법이 잘 정립되어 있지 않고, 또한 AUC 침전조는 핵입계 문제를 해결하기 위하여 일반적으로 많이 사용되는 원통형 침전조가 아닌 Slab형 육면체로 되어 있는데, 아직 이 반응기에서 이루어지는 AUC 침전 결정화속도나 동력학적 특성에 대한 해석은 보고되어 있지 않다.

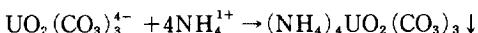
본 연구는 반회분식으로 조업되는 Slab형 AUC 침전 결정화기에서 시간에 대한 슬러리의 농도 및 입자 분포의 변화로부터 핵생성 속도와 결정 성장 속도를 입자수지식(population balance equation)의 모멘트 변화에 의한 방법으로 구하고, 속도에 관련된 매개변수를 결정하여 그 현상을 비교, 검토함으로써 AUC 침전 결정화 연구에 대한 기초자료로 삼고자 했다.

## 2. 이 론

UNH 용액과 암모니아, 탄산가스로부터 AUC 침전 반응의 총괄반응식은 다음과 같다.



이 반응은 실제로는 가스들의 흡수, 이온들의 해리 등, 복잡한 중간단계를 경유하여 다음과 같은 최종의 AUC 침전반응이 이루어진다.



이러한 침전반응은 핵생성과 결정의 성장단계로 나누어 생각할 수 있다. 상용 결정화기에서 핵생성은 결정화 초기에만 1차 핵생성이 일어나며, 대부분 2차 핵생성이다. 2차 핵생성의 원인 중에서도 결정화기 벽이나 임펠라, 혹은 결정간의 충돌에 의해 유발되는 충돌 핵생성이 주요 원인이 된다[9, 10]. 2차 핵생성 속도는 과포화도, 슬러리 농도, 입자 체재 시간, 결정표면의 조도 등에 영향을 받고, 일반적으로 실험식  $B_s = K_s S^a M^b$  ( $B_s$ : 2차 핵생성 속도,  $S$ : 과포화도,  $M$ : 슬러리 농도)으로 표시한다[11].

그러나 2차 핵생성으로 생긴 핵중에는 재용해하거나, 더 성장하지 못하는 핵이 있는데, 이들을 제외시킨 핵생성 속도를 유효 핵생성 속도라 정의하였다[12, 13]. 보통 정상상태로 조작되는 연속식 반응기에서 미세결정은 무시하고 큰 결정들의 분포곡선에서  $B = n^0 \cdot G$  ( $B$ : 핵생성 속도,  $n^0$ : 핵입자 밀도,  $G$ : 결정 성장 속도)의 관계로부터 구하는 핵생성 속도는 유효 핵생성 속도와 유사하다고 볼 수 있다.

결정 성장의 율속단계는 보통 확산과 표면 반응이라

고 생각하고, 일반적으로 과포화도의 함수  $G = kg \cdot S^a$ 로 표시하며, 과포화도나 율속단계에 따라 지수( $g$ ) 값이 달라진다[10].

AUC 침전반응속도를 용이하게 구하기 위해서 등온 상태, 반회분식 조업에서의 입자수지식을 세웠으며, 입자들의 뭉침이나 깨어짐 등의 현상은 없고, 핵의 크기는 일정하다고 가정하였다. 그리하여 입자수지식은 다음과 같은 편미분 방정식으로 쓸 수 있다.

$$\frac{\partial(nV)}{\partial t} = \varepsilon \cdot V \cdot B \cdot \delta(L - L_0) - \frac{\partial(GnV)}{\partial L} \quad (1)$$

$V$ : 조업 부피,  $L_0$ : 초기핵의 크기  $\delta$ : Delta function,  $n$ : 단위 부피당 입자 밀도,  $\varepsilon$ : 용액의 부피 분율

반회분식 조업에서는 조업 부피가 계속 변하므로 (1)식은 다음 식과 같이 나타내는 것이 편리하다.

$$\frac{\partial \bar{n}}{\partial t} = \varepsilon \cdot V \cdot B \cdot \delta(L - L_0) - \frac{\partial(G\bar{n})}{\partial L} \quad (2)$$

$$(\bar{n} = n \cdot V) \quad (3)$$

식 (2)를 풀기 위하여  $\bar{n}$ 를 결정 크기  $L$ 에 대해 모멘트 변환했다.

$$\bar{\mu}_j = \int_0^\infty \bar{n}(L \cdot t) L^j dL; (j=0, 1, 2, 3, \dots) \quad (4)$$

단, 조업 부피내 총 결정수 :

$$\bar{\mu}_0 = \int_0^\infty \bar{n} dL \quad (5)$$

조업 부피내 총 결정 길이 :

$$\bar{\mu}_1 = \int_0^\infty \bar{n} L dL \quad (6)$$

조업 부피내 총 결정 면적 :

$$K_s \bar{\mu}_2 = \int_0^\infty K_s \bar{n} L^2 dL \quad (7)$$

조업 부피내 총 결정 부피 :

$$K_v \bar{\mu}_3 = K_v \int_0^\infty \bar{n} L^3 dL = (1 - \varepsilon) V \quad (8)$$

$K_s$  : 면적 형상 인자

$K_v$  : 부피 형상 인자

식 (2)에  $L^j$ 를 곱하고 적분하면,

$$\frac{d \bar{\mu}_j}{dt} = \varepsilon V B L_0^j + j G \bar{\mu}_{j-1} \quad (j=0, 1, 2, 3, \dots) \quad (9)$$

각 순간의 핵생성 속도와 결정 성장 속도는 식 (9)로부터 시간에 대한 모멘트 값의 변화로 구할 수 있다.

$$B = \frac{1}{\varepsilon V} \frac{d \bar{\mu}_0}{dt} \quad (10)$$

$$G = \frac{1}{\bar{\mu}_0} \frac{d \bar{\mu}_1}{dt} \quad (11)$$

혹은

$$G = \frac{1}{2} \frac{d\bar{\mu}_2}{dt} \quad (12)$$

또한 입자들의 가중치 평균 크기 ( $\bar{L}$ )와 분산 계수 ( $C_v$ )도 모멘트 값으로 나타내면

$$\bar{L} = \frac{\int_0^\infty W(L) L dL}{\int_0^\infty W(L) dL} = \frac{\bar{\mu}_4}{\bar{\mu}_3} \quad (13)$$

$$\sigma^2 = \frac{\int_0^\infty W(L) (L - \bar{L})^2 dL}{\int_0^\infty W(L) dL} = \frac{\bar{\mu}_5}{\bar{\mu}_3} - (\frac{\bar{\mu}_4}{\bar{\mu}_3})^2 \quad (14)$$

단,  $W(L) = \rho K_v L \bar{n}(L)$

$$C_v = \frac{\sigma}{\bar{L}} = \sqrt{\frac{\bar{\mu}_5 \cdot \bar{\mu}_3}{\bar{\mu}_4^2} - 1} \quad (15)$$

### 3. 실험

#### 3-1. 실험장치

본 실험에 사용된 AUC 결정화기는 Fig. 1에 나타낸 바와 같이 8L 용량의 침전조, 슬리리 순환 펌프, 가스들을 흡수시킬 수 있는 노즐 상자로 구성되어 있다.

AUC 침전조는 slab형 육면체로 폭 50mm, 높이

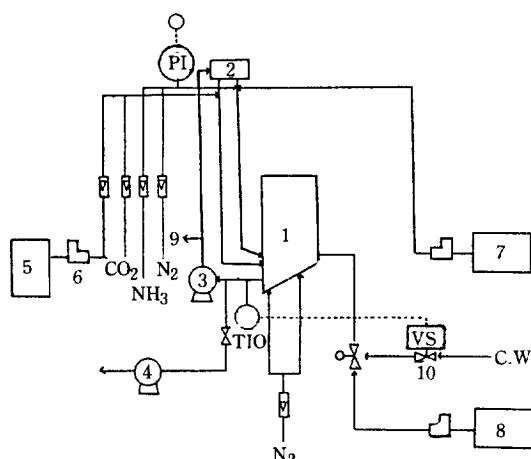


Fig. 1. Flow diagram of AUC crystallization process.

- |                                  |                         |
|----------------------------------|-------------------------|
| 1. AUC Precipitator              | 6. UNH Feeding Pump     |
| 2. Nozzle Box for Gas Absorption | 7. Deionized Water Tank |
| 3. Circulation Pump              | 8. Hot Water Tank       |
| 4. Product Pump                  | 9. Sampling Tap         |
| 5. UNH Storage Tank              | 10. Solenoid valve      |
- PI. Pressure indicator

Table 1. Operation conditions of AUC crystallization.

1. Initial volume of water	:	3 L
2. U-Concentration of UNH	:	339.9 g-U/L
3. Feedrate of CO <sub>2</sub>	:	5.3 L/min
4. Feedrate of NH <sub>3</sub>	:	7.8 L/min
5. Feedrate of N <sub>2</sub>	:	1.0 L/min
6. Temperature	:	55±2 °C
7. Feedrate of UNH	:	7.4–24.2 cc/min

300 mm, 높이는 긴 면이 770 mm, 짧은 면이 600 mm로, 밑면을 30도 경사지게 하여 침전물이 침적되는 것을 방지하였으며, 혼합상태를 잘 관찰할 수 있도록 투명 아크릴판으로 제작하였다. 순환 펌프는 침전조의 측면 하부에 설치하여 AUC 슬리리가 노즐 상자로 운반되고, 노즐 상자로 들어온 슬리리는 두 노즐로 나누어져서, 한쪽 노즐은 유량계를 통과한 탄산가스와 UNH 용액과 접촉하게 하고 다른쪽 노즐은 NH<sub>3</sub>가스와 접촉한 다음 다시 침전조로 순환되도록 하였다. 침전조 뒷면에는 침전조 크기의 자켈을 부착하였다.

#### 3-2. 실험방법

처음 침전조에 증류수 3L를 채우고 NH<sub>3</sub>와 CO<sub>2</sub>를 일정속도로 주입하면서 펌프로 순환시켰다. 이때 흡수 기체의 반응열에 의해 온도가 상승했다. 침전조의 온도가 50°C에 이르면 UNH 용액을 일정한 속도로 주입하였고, 침전조의 온도를 자켈과 solenoid valve를 통해 냉수를 순환시킴으로서 55±2°C로 유지하였다. UNH 용액이 주입되는 동안(150분) 시료 채취점에서 슬리리를 일정량 채취하고 여과하여 AUC 입자들을 모액과 분리하였다.

건조된 AUC의 입자 분포는 Sedigraph-2000 (micrometrics제)으로 측정하였으며, 여액중의 우라늄 농도를 정량하였다.

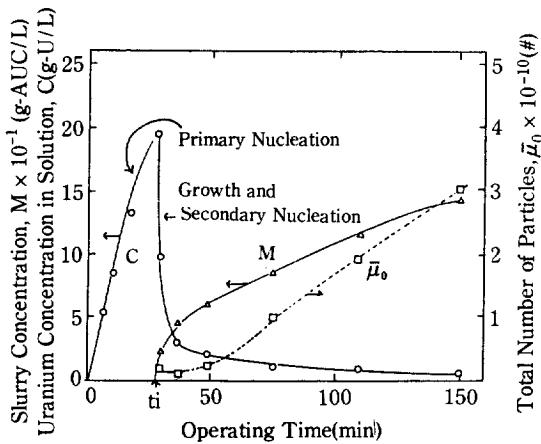
본 실험의 조업 변수를 일괄 Table 1에 나타내었다.

### 4. 실험결과 및 고찰

#### 4-1. 우라늄 농도 및 결정크기의 변화

Fig. 2에 UNH 용액의 주입속도를 7.4 cc/min로 유지한 경우, 조업시간에 따라 달라지는 우라늄 농도 및 슬리리 농도, 결정의 총입자수를 나타내었다.

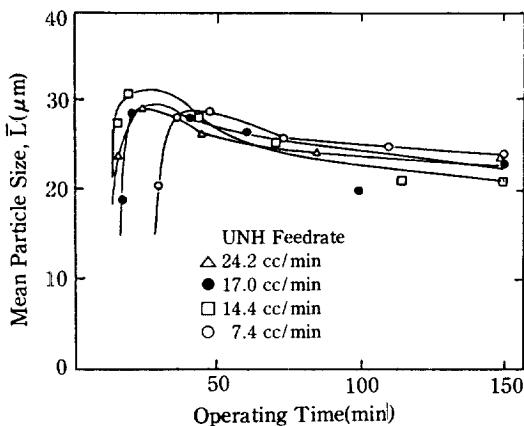
UNH 용액을 주입하면 우라늄 농도가 계속 증가하여 최대농도에 도달했다가 급격히 감소하고 있다.



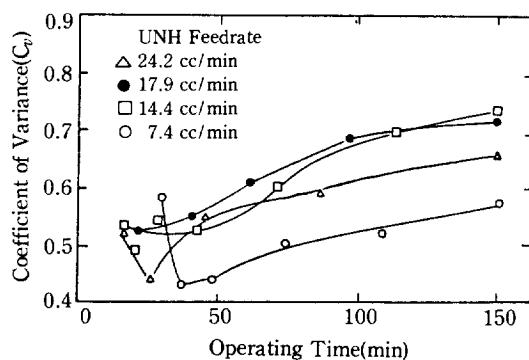
**Fig. 2. Changes of uranium concentration, slurry concentration, total number of particles with operating time at UNH feedrate = 7.4 cc/min.**

UNH 용액의 주입속도에 따라 이와같은 현상이 천이 될 뿐 최대 우라늄 농도는 큰 차이없이 대략  $20.8 \pm 1.8$  g-U/L를 나타내었다.

1차 핵생성 후 우라늄 농도가 빠른 속도로 감소하는 동안에 슬러리 농도는 빨리 증가하나, 미세입자들은 다시 용해되어 총입자수는 약간 감소하다가 다시 증가했다. 평균입자 크기는 Fig. 3에서 보는 바와 같이 UNH 용액의 주입속도에 관계없이 성장속도가 큰 초기에는 빨리 증가하고, 점차 2차 핵생성이 커지면 미세입자들이 많아지면서 공히 약간 감소현상을 나타내고 있다. 분산 계수는 작은 입자들의 양과 관계가 있으며, 초기에 작은 입자들이 용해될 때에는 감소되는 경향을

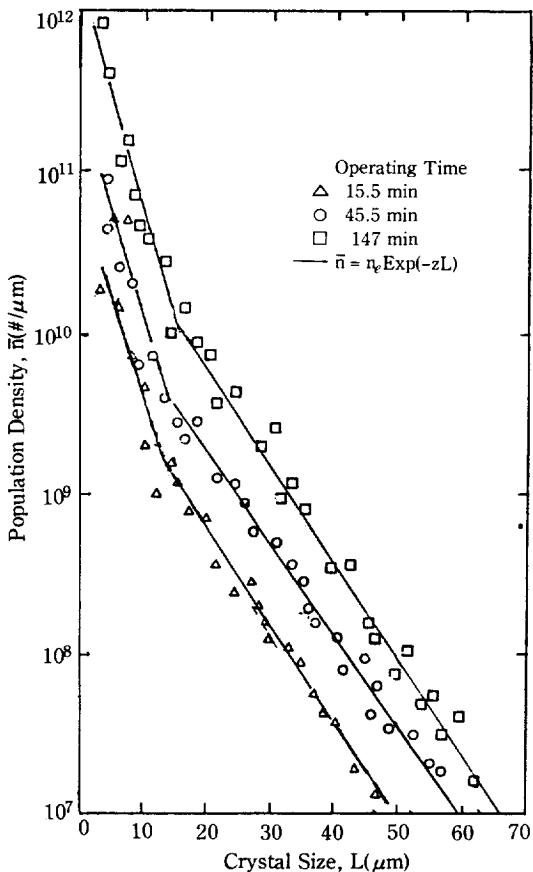


**Fig. 3. Changes of mean particle size with operating time.**



**Fig. 4. Change of coefficient of variance with operating time.**

보이다가 점차 증가함을 Fig. 4에서 볼 수 있다. 특히 UNH의 주입속도가 낮은 경우(7.4 cc/min)와 큰 경우(24.2 cm/min) 분산계수가 저하하는 것은 초기에는 균일한 결정이 형성되지만 2차 핵생성은 적기 때문으로



**Fig. 5. Population density( $\bar{n}$ ) as a function of crystal size at UNH feedrate = 24.2 cc/min.**

생각된다.

#### 4-2. AUC 결정의 입도 분포

조업시간에 따라 변하는 입도 분포 곡선을 Fig. 5에 보는 바와 같이 Semilog 좌표계에 표시하면 15  $\mu\text{m}$  이상의 큰 입자들은 시간에 관계없이 이 좌표 계에서 연속식 반응기의 정상상태에서 나오는 입도 분포 곡선과 유사하게 직선으로 나타낼 수 있었음에 비해, 15  $\mu\text{m}$  이하의 작은 입자들의 분포는 직선에서 벗어나고 있음을 알 수 있었고, 이를 AUC 1g당 입도 분포로써 log-log 좌표계에 표시할 때 Fig. 6과 같이 나왔으므로 실험식은 다음과 같이 세울 수 있었다.

$$\bar{n} = V \cdot M n_x \\ = V \cdot M n_x L^{-y} (\#/\mu\text{m}, L \leq 15 \mu\text{m}) \quad (17)$$

$$\bar{n} = n_e \text{Exp}(-zL) (\#/\mu\text{m}, L > 15 \mu\text{m}) \quad (18)$$

여기서  $M$ 은 슬러리 농도,  $n_x$ 는 AUC 1g당 입도 분포이며, 특히  $y$ 값은 UNH 주입속도나 조업시간에 무관하고 평균  $2.84 \pm 0.05$ 를 얻었다. 미세입자들의 입도

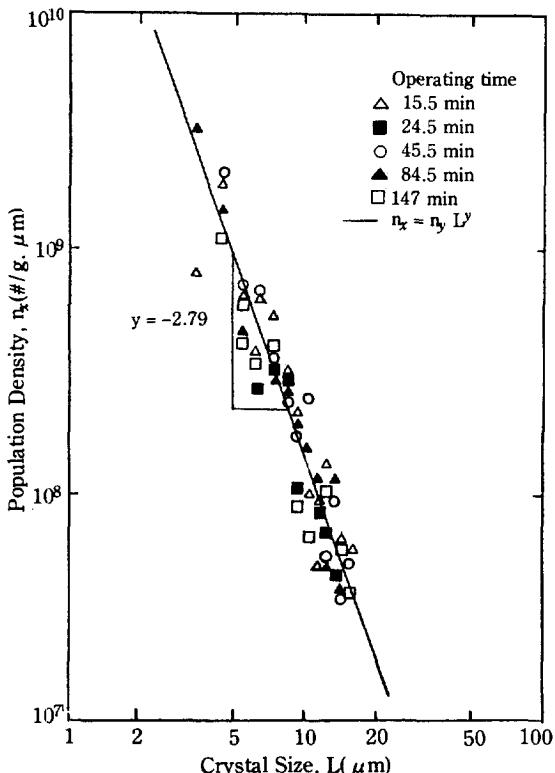


Fig. 6. Population density( $n_x$ ) distribution curve of small size( $L \leq 15 \mu\text{m}$ ) at UNH feedrate = 24.2 cc/min.

분포가 큰 이유로는 여러가지로 해석할 수 있으나[14-18], 본 AUC 결정은 2차 핵생성이 주원인으로 볼 수 있으며, 2차 핵생성의 원인은 과포화도 보다 순환 층돌에 의한 영향을 크게 받는 것으로 생각된다. Rusli 등[19]에 의하면 층돌에 의한 2차 핵의 미세입자 분포는 결정크기의 함수로만 표시할 수 있다고 한 것과 같다.

#### 4-3. 2차 핵생성 속도

본 AUC 결정화조의 중요한 특징은 외부 순환 펌프에 의해 슬러리를 순환하는 것으로서 이때, 층돌에너지가 대단히 큰 것이다. 그러므로 결정들이 순환 펌프나 침전조, 또는 다른 결정과의 층돌에 의해 2차 핵생성이 크게 유발될 수 있는 것이다.

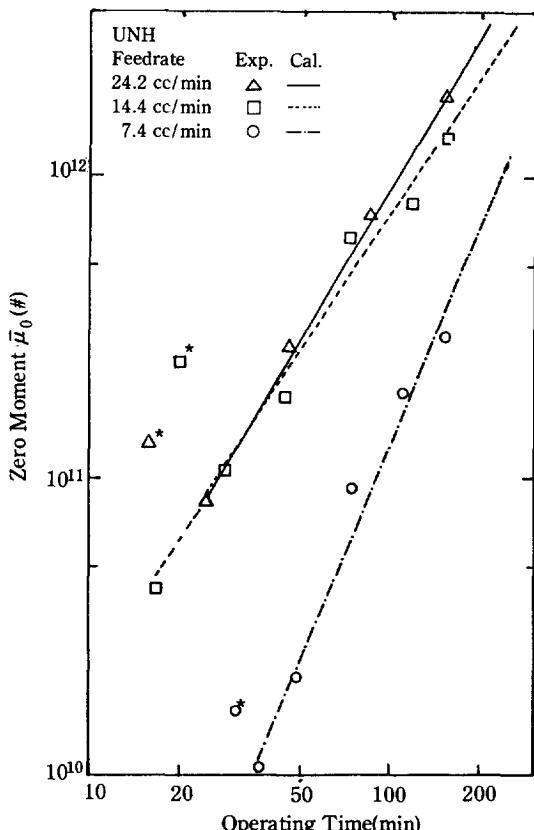


Fig. 7. The zero moment vs. operating time ( $\bar{\mu}_0 = a_0 t^{b_0}$ ).

UNH Feedrate	$a_0 \times 10^{-8}$	$b_0$
24.2 cc/min	3.393	1.73
14.4 cc/min	6.680	1.53
7.4 cc/min	0.916	2.46

Fig. 7은 각 순간의 0차 모멘트( $\bar{\mu}_0$ )를 대수 좌표계에 표시한 것이며, 시간에 대한 함수로 나타내고(식 19), 미분하여(식 20) 2차 핵생성 속도를 구할 수 있었다. 그러나 핵생성 속도가 큰 초기점들은(Fig. 7 \*부분) 제외하고 2차 핵생성이 중요해지는 점부터 0차 모멘트를 구하였다.

$$\bar{\mu}_0 = a_0 t^{b_0} \quad (19)$$

$$B_s = \frac{1}{\epsilon V} \frac{d\bar{\mu}_0}{dt} = \frac{1}{\epsilon V} a_0 b_0 t^{b_0-1} \quad (20)$$

이렇게 구한 2차 핵생성 속도는 우라늄 농도에는 거의 무관하고, Fig. 8과 같이 슬러리 농도의 함수로 표시할 수 있었다. 슬러리를 강력히 교반하여 큰 결정이 마도하면서 2차 핵이 잘 생성된다고 판단할 수 있으며, 이 경우 2차 핵생성 속도는 문헌에 지적한 바와 같이 [10] 과포화도에 의한 영향보다 슬러리 농도 등에 의한 영향이 크다고 볼 수 있다. 사실 초기 AUC 결정의 모양은 Fig. 9와 같이 모서리가 뚜렷한데 시간이 지나면서 Fig. 10과 같이 둥글게 된 것으로도 확인할 수 있었다. UNH 용액의 주입속도가 큰 14.4; 24.2 cc/min 일 경우에는 다음과 같은 식으로,

$$B_s = 2.076 \times 10^8 M^{0.46} \quad (21)$$

낮은 7.4 cc/min의 경우는

$$B_s = 7.407 \times 10^5 M^{1.48} \quad (22)$$

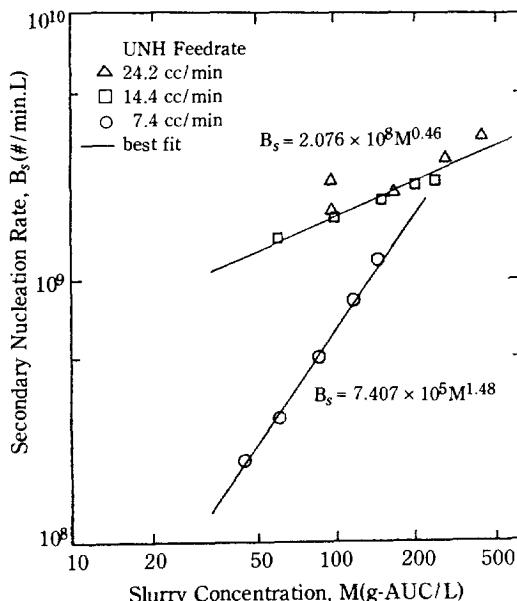


Fig. 8. Effect of slurry concentration on secondary nucleation rate.



Fig. 9. SEM photograph of AUC powder with original habit.

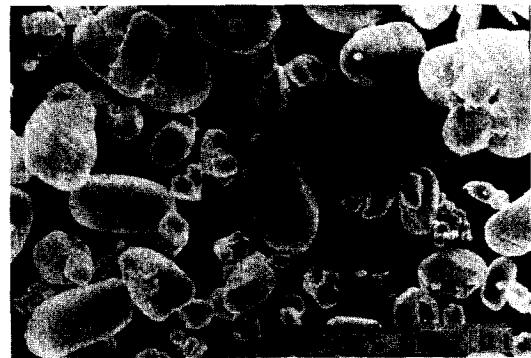


Fig. 10. SEM photograph of rounded AUC powder.

로 나타낼 수 있었다. 이와 같이 2차 핵생성 속도에 주입속도와 슬러리 농도의 영향이 대단히 큰 것은 초기 핵생성 속도가 결정적인 인자이며, 다음은 순환시 충돌마모현상 때문이라고 고찰된다.

#### 4-4. 유효 핵생성 속도

유효 핵생성 속도  $B_e$ 는  $15 \mu\text{m}$  이상의 입도 분포 곡선을  $L \rightarrow 0$ 까지 연장하여 유효 0차 모멘트( $\bar{\mu}_{0e}$ )의 값을 구하여 조업시간과의 관계를 Fig. 11에 나타내었다. 이로부터 0차 모멘트 값을 시간에 대한 관계식으로 구하고 유효 핵생성 속도식을 구하였다.

$$\bar{\mu}_{0e} = a_{0e} t^{b_e} \quad (23)$$

$$B_e = \frac{1}{\epsilon V} \frac{d\bar{\mu}_{0e}}{dt} = \frac{1}{\epsilon V} a_{0e} b_{0e} t^{b_{0e}-1} \quad (24)$$

이렇게 구한 유효 핵생성 속도를 2차 핵생성 속도와 다음과 같이 나타내었다.

$$B_e = F_e \cdot B_s \quad (25)$$

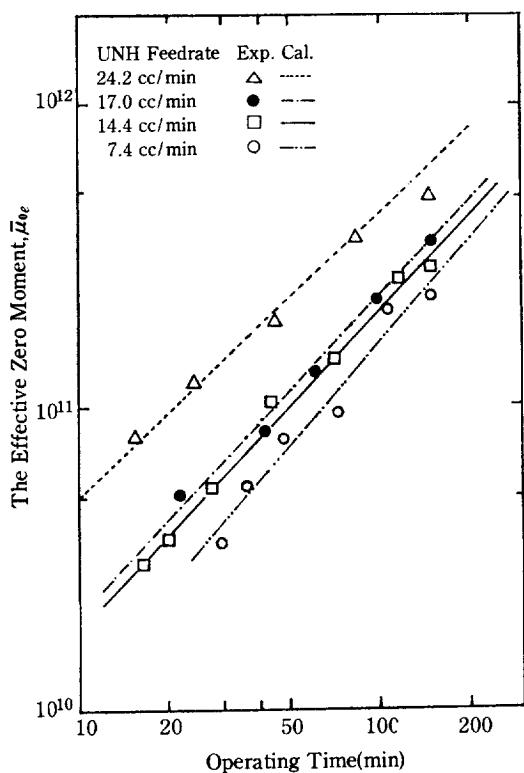


Fig. 11. The effective zero moment vs. operating time ( $\bar{\mu}_{0e} = a_e t^{b_e}$ ).

UNH Feedrate	$a_e \times 10^{-9}$	$b_e$
24.2 cc/min	5.525	0.95
17.0 cc/min	1.866	1.04
14.4 cc/min	1.604	1.06
7.4 cc/min	0.837	1.14

여기서  $F_0(B_e/B_s)$ 는 2차 핵생성시 큰 결정으로 성장할 수 있는 핵생성 속도의 비율이며, 농도의 함수임으로.

$$F_0 = k_m C^a \quad (26)$$

로 나타내며, 결국 유효 핵생성 속도  $B_e$ 는

$$B_e = (k_m C^a) (k_s M^b) = k_e C^a M^b \quad (27)$$

로 되어 Fig. 12와 같은 결과를 얻을 수 있다.

그리하여 본 실험에서는 다음과 같은 유효 핵생성 속도의 상관식을 얻었다.

$$B_e = 5.03 \times 10^5 C^{0.95} M^{1.48} \quad (28)$$

(UNH feedrate = 7.4cc/min)

$$B_e = 4.19 \times 10^7 C^{0.31} M^{0.46} \quad (29)$$

(UNH feedrate = 14.4, 24.2cc/min)

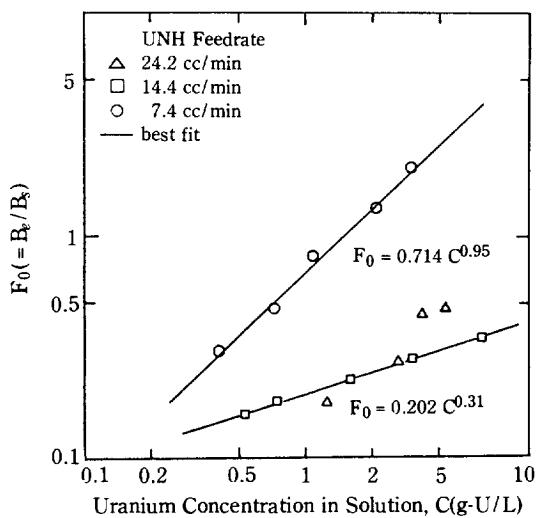


Fig. 12.  $F_0(B_e/B_s)$  as a function of uranium concentration in solution.

UNH 용액의 주입속도가 7.4 cc/min인 경우에는 2차 핵생성 속도가 적으로 동일 우라늄 농도에서 쉽게 성장할 수 있는 핵이 많아 우라늄 농도에 대한 지수값도 크다고 볼 수 있다. 슬러리 농도에 영향을 받는 2차 핵생성 속도는 조업시간에 따라 증가함에 비해 유효 핵생성 속도는 우라늄 농도에도 영향을 받으므로 조업시간에 따라 점차 줄어든다.

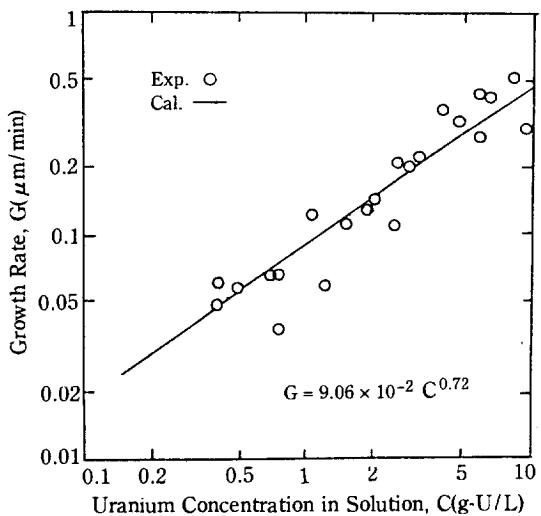


Fig. 13. Growth rate as a function of uranium concentration in solution.

#### 4-5. 결정 성장 속도

결정 성장 속도는  $15 \mu\text{m}$  이상 크기의 입도분포 곡선으로부터 1차 및 2차 모멘트 값을 구하고 식(11)과 (12)에 대입하여 구하였다.

그 결과 본 실험에서는 Fig. 13과 같이 우라늄 농도에 대한 다음 상관식을 얻었다.

$$G = 9.06 \times 10^{-2} C^{0.72} \quad (3)$$

본 실험에서는 지수값이 1보다 적으므로 확산을 윤속 단계로 볼 수 없고, 그 대신에 본 결정화조에서의 혼합 속도가 충분히 빠르고 결정의 크기는  $100 \mu\text{m}$  이하이므로 표면 반응에 의해 윤속된다고 판단된다. 이와 같은 보고를 최근 문헌[20, 21]에서도 발견할 수 있어 본 실험의 판단을 뒷받침해 준다.

## 5. 결 론

1. 반회분식으로 조업되는 AUC 침전조에서 1차 핵 생성은 우라늄 농도가  $20.8 \pm 1.8 \text{ g-U/L}$ 일 때 일어나며, 결정크기는 초기에 빠른 속도로 증가하나 시간과 함께 점차 감소하는 반면 분산도는 점차 증가했다.

2. 입자 밀도는  $15 \mu\text{m}$ 를 경계로 다음과 같이 나누어 표시할 수 있다.

$$\bar{n} = V \cdot M_n \cdot L^{-y} \quad \# / \mu\text{m} \quad L \leq 15 \mu\text{m}$$

$$\bar{n} = n_e \exp(-ZL) \quad \# / \mu\text{m} \quad L > 15 \mu\text{m}$$

3. 반회분식의 data로부터 2차 핵 생성 속도, 유효 핵 생성 속도, 결정 성장 속도를 구할 수 있었으며, 특히 결정 성장 속도는 우라늄 농도에 영향을 받으며, 다음과 같은 관계식을 얻었다.

$$G = 9.06 \times 10^{-2} C^{0.72} \mu\text{m/min}$$

## NOMENCLATURE

- a : Order of secondary nucleation rate
- B : Overall nucleation rate ( $\#/L \cdot \text{min}$ )
- b : Exponent of slurry concentration
- $B_e$  : Effective nucleation rate ( $\#/L \cdot \text{min}$ )
- $B_s$  : Secondary nucleation rate ( $\#/L \cdot \text{min}$ )
- C : Uranium concentration in solution ( $\text{g-U/L}$ )
- $C_v$  : Coefficient of variance
- $F_0$  : The fraction of secondary nuclei growing to large size ( $B_e/B_s$ )
- G : Overall growth rate ( $\mu\text{m/min}$ )
- g : Order of growth rate
- $k_e$  : Coefficient of effective nucleation rate

$k_g$	: Coefficient of growth rate
$k_m$	: Coefficient of $F_0$
$k_s$	: Coefficient of secondary nucleation rate
$K_s$	: Surface area shape factor of particle
$K_v$	: Volume shape factor of particle
L	: Particle size ( $\mu\text{m}$ )
$L_0$	: Nuclei size ( $\mu\text{m}$ )
$\bar{L}$	: Mean particle size ( $\mu\text{m}$ )
M	: Slurry concentration ( $\text{g-AUC/L}$ )
n	: Population density per unit volume ( $\#/ \mu\text{m} \cdot \text{L}$ )
$\bar{n}$	: Population density ( $= nV$ ) ( $= \#/ \mu\text{m}$ )
$n_e$	: Population density of effective nuclei (at $L = 0$ ) ( $\#/ \mu\text{m}$ )
$n_x$	: Population density per unit weight ( $\#/ \mu\text{m} \cdot \text{g}$ )
$n_y$	: Population density of nuclei (at $L = 0$ ) per unit weight ( $\#/ \mu\text{m} \cdot \text{g}$ )
$n^0$	: Population density of nuclei
S	: Supersaturation
t	: Operating time (min)
V	: Operating volume of crystallizer (L)
y	: Exponent of population density
z	: Constant of population density

## Greek Letters

$\delta$	: Dirac delta function
$\epsilon$	: Volume fraction of solution
$\bar{\mu}_j$	: The $j$ th moment of the population density
$\bar{\mu}_{je}$	: The effective $j$ th moment of the population density
$\rho$	: AUC particle density (2773 g/L)

## REFERENCES

- 장인순 외 : KAERI/RR-454/84, (1984).
- 박진호 외 : KAERI/RR-524/86, (1986).
- Chernyaev, I.I., et al.: Proceedings of the Second International Conferences on the Peaceful uses of Atomic Energy, **28**, 235 (1958).
- Cejka, J.: Chem. Tech. Praze., Mineral (Cech), **7**, 75 (1965).
- Cinneide, S.O., Scanlan, J.P., and Hynes, M.J.: J. Inorg. Nucl. Chem., **37**, 1013 (1975).
- 장길상, 박명혜, 이철수, 장인순 : 화학공학, **20** (4), 275 (1982).
- 장인순 외 : KNFDI/79R-2102/79 (1979).
- 장인순 외 : KAERI/RR-241/80 (1980).
- Clontz, N.A. and McCabe, W.L.: Chem. Eng. Symp. Series, 67, 121, 42 (1972).
- Nyvlt, J., Sohn, O., Matuchova, M., and Broul, M.: The Kinetics of Industrial Crystallization, Elsevier (1985).

11. Dasai, R.M., Rachow, J.W., and Tim, D.C.: *A.I. Ch. E.J.*, **20**(1), 43 (1974).
12. Garside, J. and Jancic, S.J.: *A.I. Ch. E.J.*, **25**(6), 948 (1979).
13. Daudey, P.J. and De Jong, E.J.: Industrial Crystallization 81, Jancic, S.J. and De Jong, E.J., (ed), 123 (1982).
14. Bransom, S.H.: *Brit. Chem. Eng.*, **5**, 838 (1960).
15. Janse, A.H. and De Jong, E.J.: Industrial Crystallization, Mullin, J.W., (ed), Plenum, New York, 145 (1976).
16. Randolph, A.D.: *Ind. Eng. Chem. Fund.*, **8**(1), 59 (1969).
17. Grootscholten, P.A.M., Asselbergs, C.J., Scrutton, A., and De Jong, E.J.: Ind. Crystallization 81, Jancic, S.J. and De Jong, E.T., (ed) 123 (1982).
18. Cise, M.D. and Randolph, A.D.: *A.I. Ch. E. Symp. Series*, **68**, 121, 42 (1972).
19. Rusli, I.T., Larsen, M.A., and Garside, J.: *A.I. Ch. E. Symp. Series*, **76**, 193, 52 (1980).
20. Tavare, N.S. and Garside, J.: *Chem. Eng. Res. Des.*, **64**, 109 (1986).
21. Tavare, N.S., Shah, M.B., and Garside, J.: *Powder Tech.*, **44**, 13 (1985).