

사용후핵연료 건식분말화 공정 화학반응 평형 예측

박병홍, 서중석, 윤지섭

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

bhpark@kaeri.re.kr

한국원자력연구소에서 개발하고 있는 사용후핵연료 차세대관리 공정은 산화물 사용후핵연료를 대상으로 건식분말화, 전해환원, 금속전환체 용융공정의 일련의 공정으로 사용후핵연료의 부피, 발열량, 방사독성을 감소시키는 기술이다. 사용후핵연료 차세대관리 공정의 첫 단계인 건식분말화 공정에서 펠렛 형태의 사용후핵연료는 공기분위기에서 산화되어 분말 형태로 전환된다. 산화에 따른 형상의 변화는 UO_2 와 U_3O_8 의 부피 차에 기인하는 것으로 이 과정에서 사용후핵연료에 존재하는 일부 휘발성 분열생성물은 고체상에서 분리 제거된다. 사용후핵연료의 구성 성분들은 다양하며 사용후핵연료 내부의 산소분압에 따라 각각 안정적인 산화물 형태를 나타낸다. 귀금속 계열의 원소들은 금속상으로 존재하는 반면 희토류 원소들은 산화물 형태로 우라늄 산화물 상에 용해되어 존재한다. 따라서 산화반응이 발생하는 건식분말화 공정에서 화학반응은 핵종에 따라 상이하게 나타나게 된다. 그러나 사용후핵연료 구성 성분에 대한 실험적 데이터는 아직 부족하며 이에 따라 화학반응 예측을 위한 계산 도구가 필요하게 된다.

본 연구에서는 문헌의 데이터를 이용하여 화학반응 관점에서 사용후핵연료 구성 성분들의 변화를 계산하여 연결 공정인 전해환원 공정에 반응 물질로 공급되는 사용후핵연료 분말에서 원소들의 안정적인 형태를 제시하고자 하였다. 건식분말화 공정은 기체-고체 반응이며 금속의 산화 반응은 속도론적 관점에서 상당히 빠른 반응으로 알려져 있기 때문에 화학평형 중심으로 연구를 수행하였다. 공정온도인 $550\text{ }^\circ\text{C}$ 에서 양론비 이상의 산소가 공급되었을 때 일부 UO_2 는 U_3O_8 를 거쳐 UO_3 로 산화되는 것으로 나타났다. 이는 UO_3 로 산화되는 반응 역시 속도가 매우 빠르다는 가정으로 우라늄-산소 시스템의 반응 깃스에너지를 최소화하는 과정에서 계산된 결과로 실험적인 접근이 필요할 것으로 판단된다. U_3O_8 의 추가 산화를 막기 위해 양론비로 공급된 공기 조건에서 귀금속 원소들은 충분히 산화되지 못하여 금속-금속산화물 형태의 혼합물로 존재하게 된다. 희토류 원소들은 3가의 안정적인 산화물을 형성하나 Tb과 같은 일부원소는 다양한 산화물이 발생하는 것으로 계산되었다. 반면 TRU 원소들은 4가의 안정적인 산화물 형태를 나타낸다. 금속전환 공정에 공급되는 Pu과 Am의 산화수는 금속전환 공정 반응에서 Pu과 Am의 화학반응을 결정하는 중요 변수로 본 연구에 따르면 PuO_2 와 AmO_2 로 전해환원 금속전환 공정에 도입되는 것으로 판단 할 수 있다. 다양한 원소들의 산화 속도 측정 데이터와 혼합물에서의 물성들의 실험 데이터가 부족한 상황에서 본 연구는 사용후핵연료 차세대관리 공정의 물질 수지 및 공정 조건 설정에 활용될 수 있을 것으로 기대되며 이후 발표되는 실험 데이터를 포함하면 계산 결과가 보다 엄밀해질 것으로 예상된다.