

## 열처리 분위기에 따른 귀금속계 핵분열생성물의 증기압 계산

이재원, 양문상, 이영순, 문제선, 박장진  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045  
 njwlee@kaeri.re.kr

사용후핵연료내에 귀금속 원소는 대부분 금속 및 금속 alloy 상태로 존재하며, 이들은 고용점 물질로 증기압이 매우 낮다. 반면에 이들의 산화물은 융점이 금속상태 보다 낮으며 증기압이 증가하므로 금속 및 금속 alloy를 고온 산화처리를 하여 휘발 제거하는 연구를 수행하고 있다. 핵분열생성물을 열처리하기 위한 분말을 담은 용기로서 내충격성이 양호한 Inconel 재질이 추천되고 있으나 산화온도에 제한을 받게 된다. 따라서 본 연구에서는 귀금속 핵분열생성물의 휘발공정조건을 설계하기 위해서 열처리분위기에 따른 상변화 및 이의 증기압을 열역학적으로 계산하였다. 열처리분위기는 산소, 공기 및 99.999% Ar(0.001% H<sub>2</sub>O)로 하여 500~1400℃로 하였다. 귀금속 원소로는 Mo, Tc, Ru, Rh 및 Pd, 귀금속 alloy로는 Mo<sub>0.45</sub>Ru<sub>0.45</sub>Pd<sub>0.1</sub>(A1), Mo<sub>0.45</sub>Ru<sub>0.45</sub>Rh<sub>0.1</sub>(A2), Mo<sub>0.45</sub>Tc<sub>0.45</sub>Rh<sub>0.1</sub>(A3)를 사용하였다. 금속석출물에서의 각 성분의 활동도는 규칙용액모델을 이용하여 계산하였으며 이 자료와 상변화에 따른 자유생성에너지 자료를 사용하여 상변화 및 증기압을 계산하였다. 그림 1은 열처리분위기에 따른 금속 및 금속 alloy의 안정상을 나타낸 것으로 열처리 분위기에 따라서 안정상에 큰 변화가 일어남을 알 수 있다.

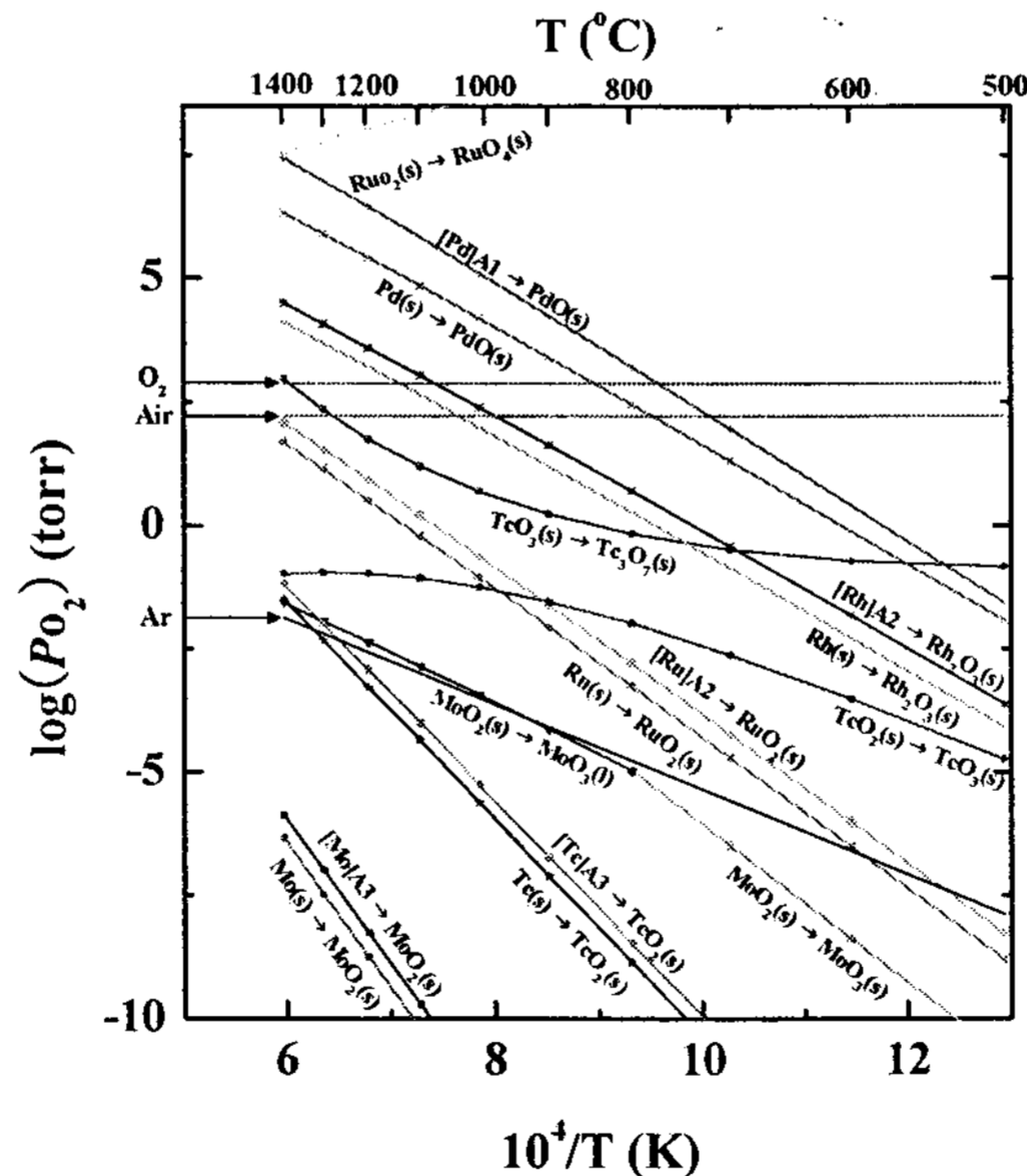


그림 1. 귀금속 및 귀금속 alloy의 산화에 필요한 산소분압 및 열처리분위기에 따른 평형상태 안정상

공기 및 산소분위기에서는 온도가 증가됨에 따라서 PdO(s) 및 Rh<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(s)는 환원되어 Pd(s), [Pd]A1 그리고 Rh(s), [Rh]A2로 존재하며, 나머지 금속 및 금속 alloy는 산화물로 존재한다. Ar분위기하에서는 MoO<sub>2</sub>(s), MoO<sub>3</sub> 및 TcO<sub>2</sub>만 산화물로 나머지 금속 및 금속 alloy는 금속상태로 존재

한다. 비점이 40°C인  $\text{RuO}_4(\text{g})$ 의 중간 상태인  $\text{RuO}_4(\text{s})$ 로  $\text{RuO}_2(\text{s})$ 가 산화되기 위해서는 높은 산소 분압이 요구됨을 알 수 있다.

증기압이 매우 낮은 Rh 및 Pd와 이의 산화물의 열처리분위기에 따른 증기압을 그림 2 및 3에 나타내었다. Rh의 경우에는 산소분위하에서  $\text{RhO}_2(\text{g})$ 로 휘발될 때에 가장 큰 증기압을 보였다. 반면에 Pd의 경우에는 산화분위기 보다는 Ar분위기에서  $\text{Pd}(\text{g})$ 로 휘발될 때에 가장 높은 증기압을 보였다.

따라서 산화휘발공정에서 특정 금속 및 금속 alloy의 휘발율을 높이기 위해서는 다양한 열처리 분위기를 도입할 필요가 있음을 알 수 있었다.

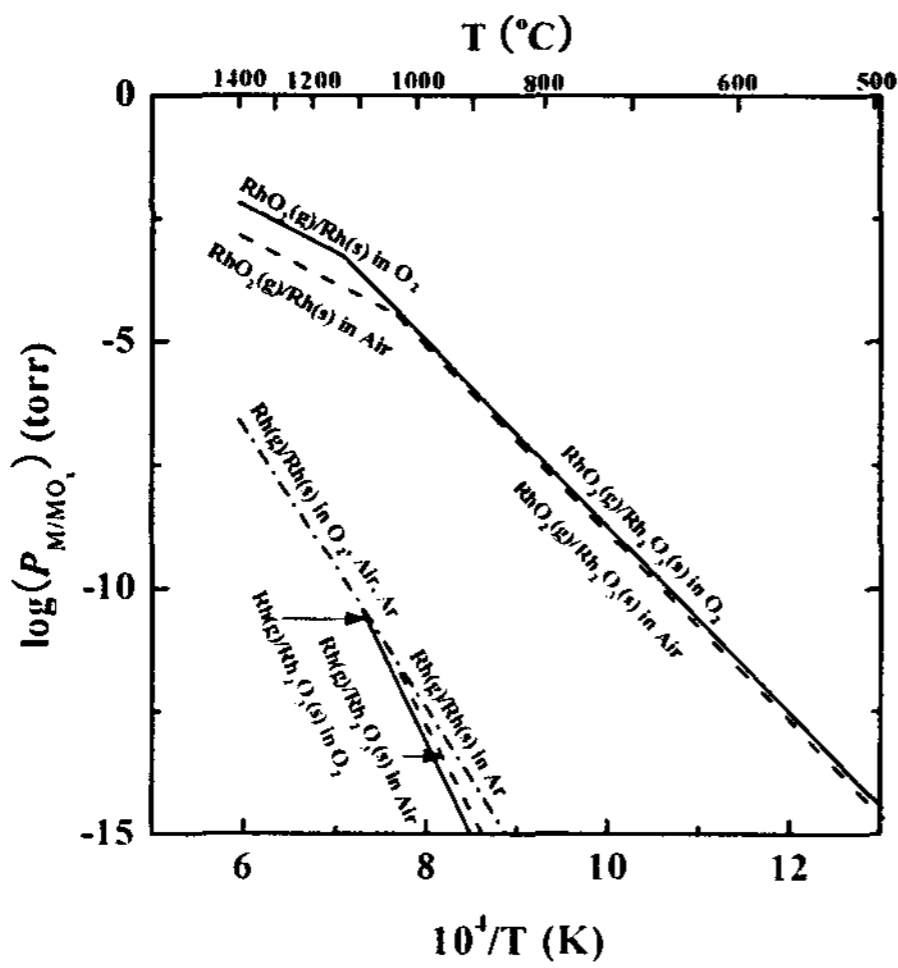


그림 2. 열처리분위기에 따른 Rh의 기체 및 기화성산화물의 증기압

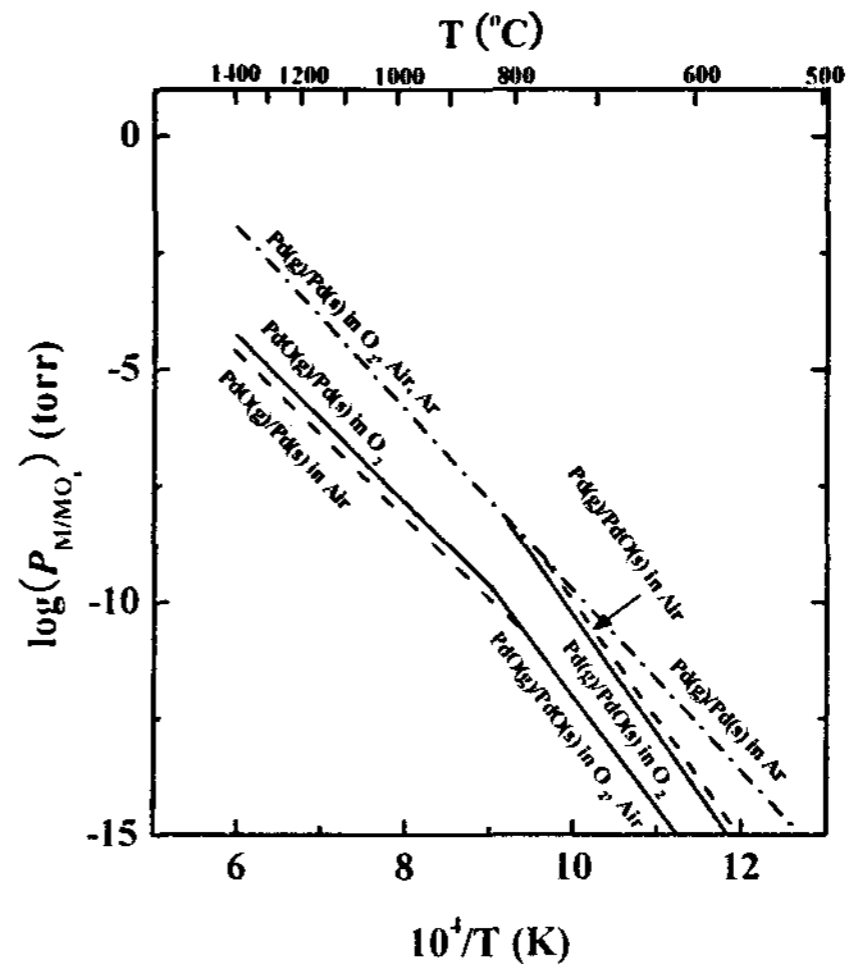


그림 3. 열처리분위기에 따른 Pd의 기체 및 기화성산화물의 증기압