

우라늄 용해용 다공질 세라믹도가니의 반응 특성 조사

이운상, 이종현, 조춘호, 김응수, 조동욱, 박성빈, 이한수
 한국원자력연구원 선진핵주기공정개발그룹, 대전광역시 유성구 덕진동 150
yslee@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료의 건식 처리공정은 금속상의 사용후핵연료를 전해정련하여 순수한 우라늄을 회수하는 공정으로서 이때 우라늄 전착물은 다량의 용융염을 함유한 수지상 형태이다. 따라서 우라늄의 중간저장 혹은 재활용을 위해서는 회수된 우라늄 전착물 내의 용융염을 제거한 후 잉곳을 제조하는 이른바 Cathode process를 거치게 되는데, 전착물을 잉곳으로 주조하기 위해서는 용융상태의 우라늄의 강한 반응성으로 인하여 흑연도가니를 세라믹으로 코팅하여 사용하던지, 또는 세라믹 도가니를 사용하여 용해한 후 잉곳 형태로 제조하게 된다. 일반적으로 우라늄을 용해할 때에는 흑연도가니에 세라믹을 코팅하여 사용하나, 사용후핵연료 건식처리 공정에서와 같이 장시간 운전이 예측되는 경우엔 코팅 층이 박리하여 탄소가 우라늄에 혼입되게 되면 불순물 허용치를 넘길 수 있으므로 문제가 된다. 또한 세라믹 도가니를 사용할 경우 재사용 시 열 충격에 의한 균열 등의 발생으로 재사용이 불가능하거나 또는 세라믹 재료가 우라늄과 반응하여 우라늄의 손실이 발생할 수 있다. 따라서 이 연구에서는 5 가지 종류의 세라믹 재료를 선정하여 1300 °C에서 우라늄과 반응시켜 SEM/EDX, XRD 등을 사용하여 우라늄과의 반응 특성 결과를 소개하고자 한다. 또한 열역학계산을 통하여 반응성을 검토하고 실험 결과와 비교하고자 한다.

2. 실험방법 및 결과

우라늄 용해에 사용할 수 있는 표 1과 같은 5 가지 종류의 다공성 세라믹 도가니(지름 25 높이 30 mm)를 그림 1과 같은 흑연 mold에 조립한 후 우라늄 피를 장입하여 3 kHz의 고주파유도로에서 1300 °C로 1시간 유지하여 우라늄을 용융시킨 상태로 반응시키며, 냉각 후 mold 표면에서 우라늄과의 반응 층을 SEM/EDX를 사용하여 분석하였다.

Table 1. Characteristics of porous ceramic materials

품명 및 재질	특성	비중	내화도	기공률
Al ₂ O ₃	다공질, >99%이상	3.2	2030 °C	17%
MgO	"	2.8	2600 °C	20%
CaO	다공질, >98%이상	2.7	2570 °C	17~20%
ZrO ₂	다공질,(CaO 4.5% 안정화)93% 이상	4.2	2350 °C	22%
Y ₂ O ₃	다공질, 99.5% 이상	3.8	2410 °C	23%

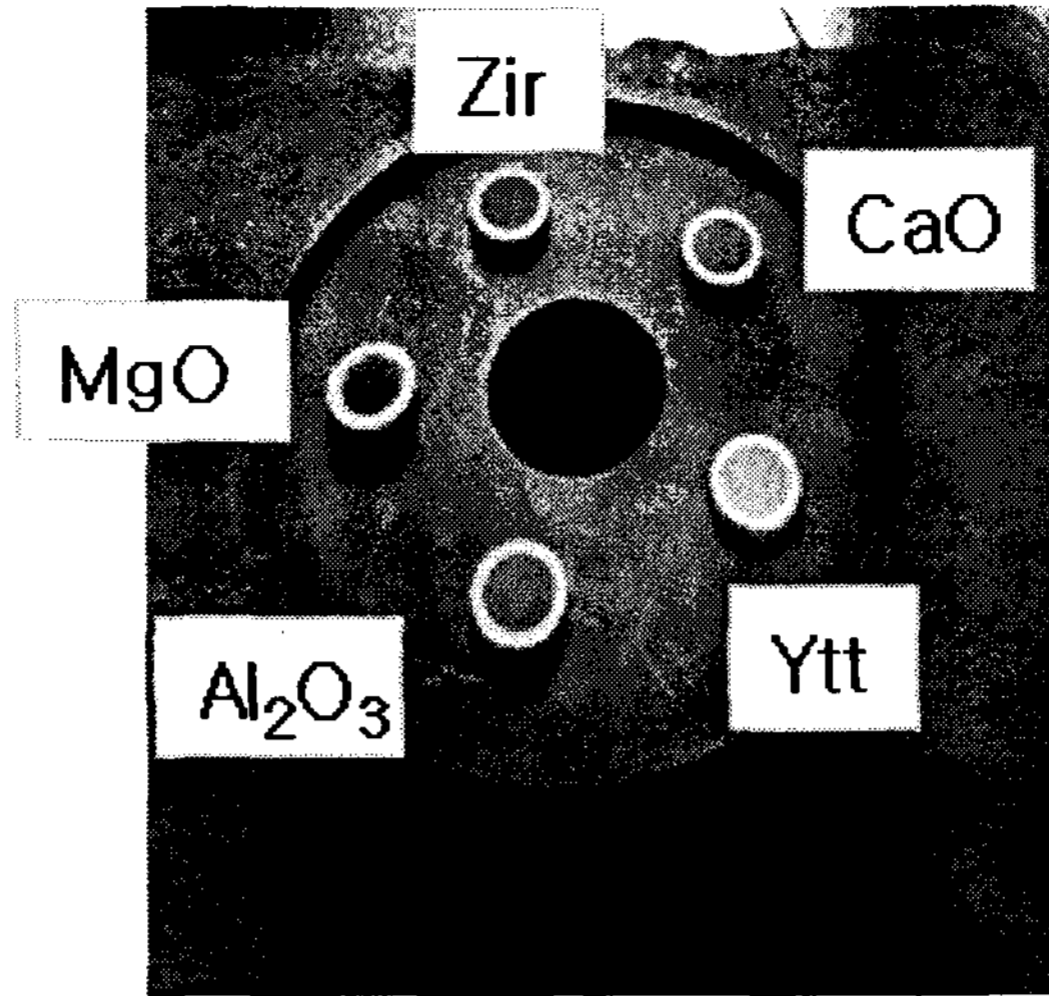


Fig 1. Moulds for experiment

열역학계산은 HSC 열역학계산 s/w를 사용하여 실험에 사용된 세라믹 재료와 우라늄 및 용융염중에 포함된 염화우라늄과의 반응에 대하여 Gibb's Free Energy 값을 검토하였다. 그림 2에 도시된 바와 같이 Al_2O_3 및 ZrO_2 를 제외한 실험에 사용된 세라믹 재료는 우라늄과의 반응성이 없는 것으로 조사되었으며, Al_2O_3 및 ZrO_2 는 우라늄의 용융 시 반응을 일으킬 우려가 있는 것으로 판단된다. 한편 전해정련용 LiCl-KCl용융염 내에는 UCl_3 를 포함하고 있는데, 열역학 계산 결과 Y_2O_3 , MgO 및 CaO등은 UCl_3 와 반응하여 염화물을 형성하는 것으로 조사되었다. 실험결과는 열역학 계산결과와 근접한 경향을 나타내었으며, 이로부터 Cathode processor용 mold재료 선정에 있어서

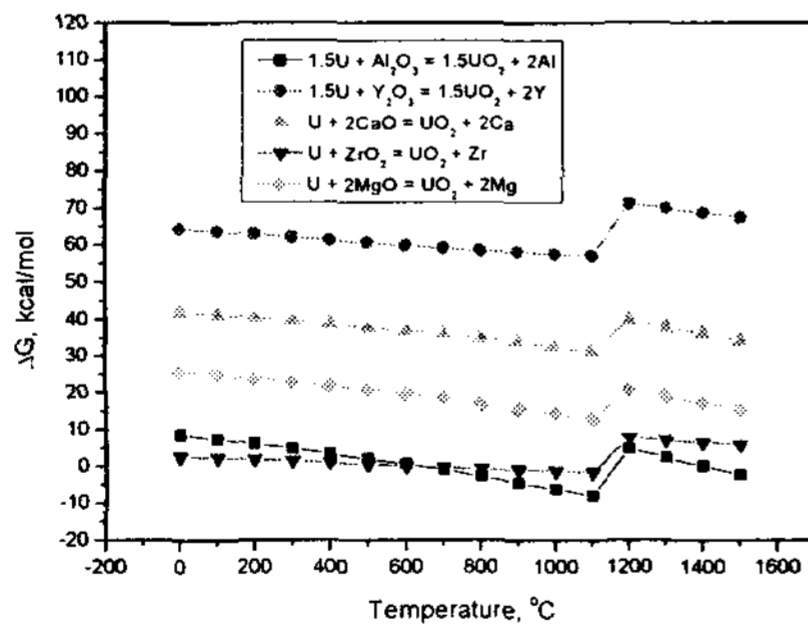


Fig 2. Chemical stability of oxide materials with uranium

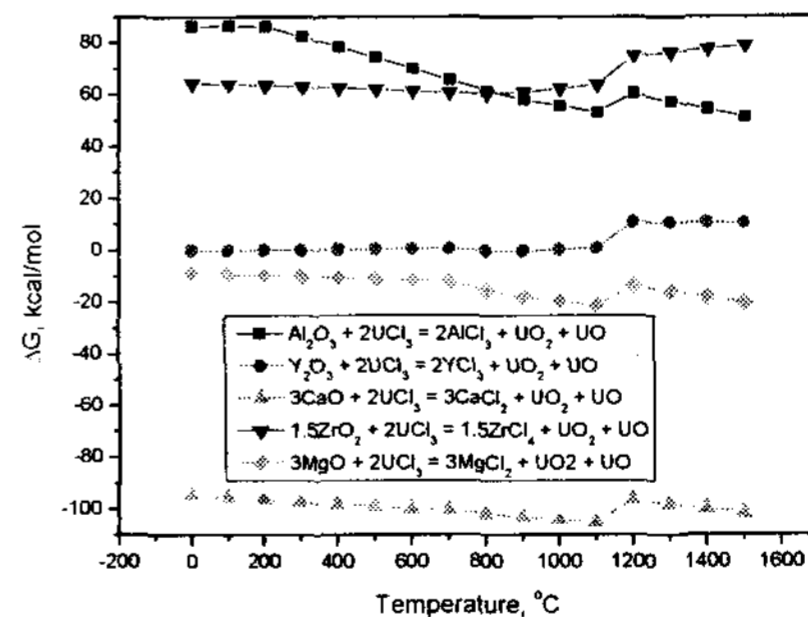


Fig. 3. Chemical stability of oxide materials with uranium chloride

기본 자료를 확보할 수 있었다.

3. 결론

열역학적 계산 결과 Al_2O_3 는 우라늄과 반응하므로 적절하지 못하고, Zirconia 도가니는 일부 구간에서 반응하나, 1300 °C에서는 반응하지 않는다. Yttria는 우라늄과 반응하지는 않으나 UCl_3 와 반응할 우려가 있으므로 우라늄 전착물의 용해용 도가니로는 적절하지 않음을 알 수 있었고, 일련의 반응성 실험결과 이를 확인 할 수 있었다.