지르칼로이-4 피복관의 염소 반응특성

박장진, 정재한, 이재원, 신진명, 이영순, 이정원
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
jjpark@kaeri.re.kr

1. 서론

국내외적으로 사용후핵연료 재활용연구가 활발하다. 사용후핵연료 재활용과정에서 폐기물이 발생하는데 이중 폐피복관(hull)이 차지하는 비율은 중량 기준으로 약 25 wt.%에 이르고 있으며, 이는 현재, 심지층 처분이 필요한 TRU폐기물로 분류되고 있다. 따라서, 폐피복관 폐기물을 천층 처분할 수 있는 저준위 폐기물화하는 연구는 매우 필요하다. 이에 대한 연구로 zircaloy-4 폐피복관의 내면을 박리하여 폐기물 준위를 낮추는 방법[1], 전해정련방법[2], 염소처리 방법[3] 등이 연구되고 있다.

본 논문에서는 TRU 폐기물인 폐피복관을 염소반응시켜 이중 $ZrCl_4$만을 고순도로 회수하기위한 전단계로서 우선 zircalloy-4 피복관과 염소가스의 반응특성을 알아보고자 한다. 이를 위하여 반응온도, 염소가스의 농도, 산화피막에 대한 영향을 확인하기위한 실험을 수행하였다.

2. 실험 및 결과

본 실험에서는 Zircalloy-4 피복관을 이용하였고, 반응온도를 10℃단위로 310℃에서 390℃까지, 염소가스농도를 10%단위로 10%에서 50%까지 실험하였다. 피복관 산화피막의 영향을 확인하기 위하여 산화온도는 50℃단위로 350℃에서 600℃까지 산소분위기하에서 산화한 피복관을 이용 실험을 하였다.

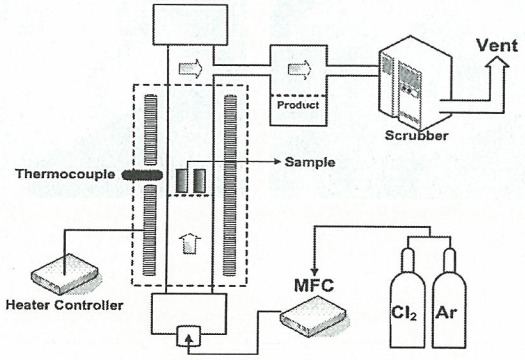

Fig 1. 피복관 염소 반응 실험장치 개략도

반응실험은 피복관 염소반응 실험장치(Fig 1.)를 제작하여 실행하였고, 실험순서는 아르곤가스를 목표온도까지 주입하면서 온도를 맞추고 이후 설정된 농도의 염소가스를 주입하여 임의의 시간까지 등온 조건하에서 피복관과 반응시켰다. 반응이 끝난 후 반응물을 채집하고 반응시킨 피복관의 무게변화로 반응률을 계산하였다.

산화처리하지 않은 피복관을 염소가스농도 20%, 반응온도 350℃ 조건에서 반응시킨 결과를 Fig. 2에 나타내었다. 반응시간에 따라 반응율이 증가하였으며, 70분 반응시 90% 정도 반응이 진행되었다. 반응온도에 따른 반응율 변화를 Fig. 3에 나타내었다. 온도를 올리면 330℃까지는 반응율이 증가하였으나 그이상 온도를 올려도 반응율은 더 이상 증대되지 않았다. Fig. 4에 보이는 것처럼, 염소 농도가 증가하면 반응율도 증가하였다. 한편, 피복관 초기 산화상태 영향을 살펴보기 위하여, zircaloy-4 피복관을 산소분위기 400℃, 450℃, 500℃, 550℃에서 산화시켜 이를 350℃, 염소농도 20%, 30분간 반응시켰을 때의 반응율을 Fig. 5에 나타내었다. 산화온도가 550℃에서는 염소반응율 5%로 낮았으며, 600도에서는 염소반응이 거의 일어나지 않았다. Fig. 6에는 반응전 피복관과 반응후 생성된 염화물, 반응이 진행되고 있는 피복관의 모양을 나타내었다.

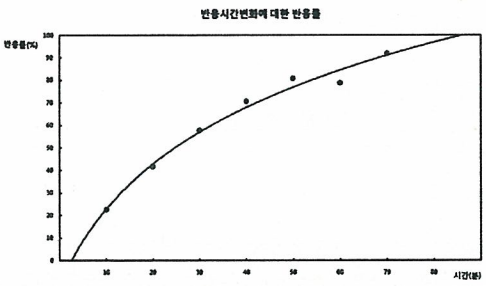

Fig 2. 반응시간에 대한 반응률

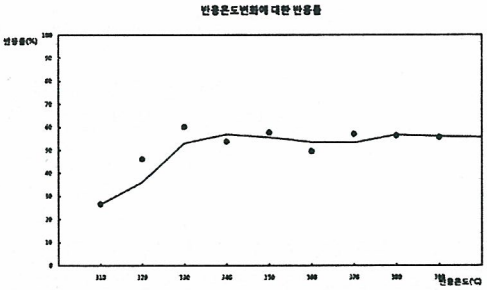

Fig 3. 반응온도에 대한 반응률

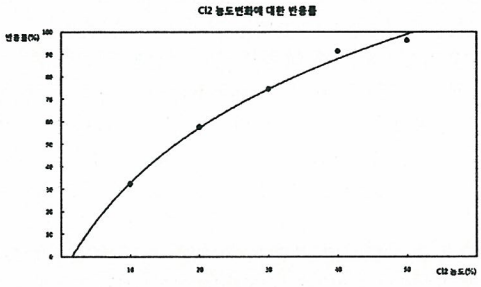

Fig 4. Cl_2농도에 대한 반응률

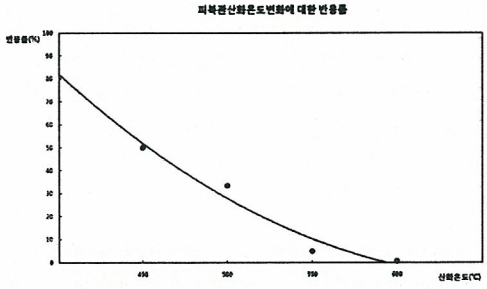

Fig 5. 산화온도에 대한 반응률

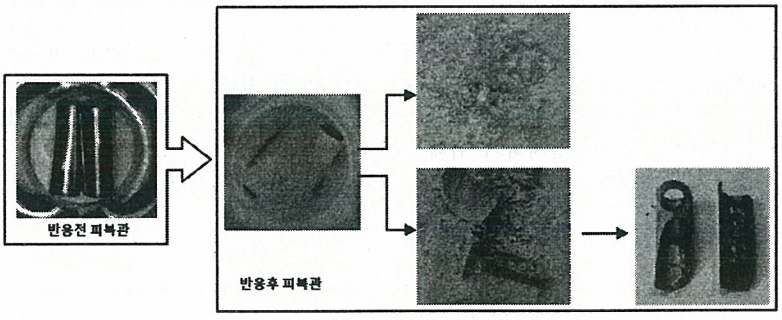

Fig 6. 피복관 반응 결과물

3. 결론

Zircalloy-4 피복관(hull)을 염소가스와 반응시킨 결과 반응 온도가 330℃ 까지는 반응율이 증가하였으나 더 이상 반응온도를 높여도 반응률은 일정하였다. 반응시간과 염소가스 농도는 증가할수록 반응률도 증가하였다. 폐피복관 산화 온도가 증가할수록 반응율이 떨어졌으며 산화온도 500℃일 때는 산화 안한 경우의 58%의 값을 보였다.

4. 참고문헌

[1] I. H. Jung, et al., "Investigation of PWR Hyll with a View to Downgrade", Separation Science and Technology, 41, 2097-2109 (2006)

[2] R. Fujia, et al., "A Metallic Fuel Cycle Concept from Spent Oxide Fuel to Metallic Fuel", Proceedings of Global 07, Sept. 9-13(2007)

[3] Y. Yasuike, et al., "Conceptual system of Zr Recycle and RRU Recovery from Hull Waste", Proceedings of Global 03, Nov. 14-16(2003)

사 사

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.