

휘발성 산화공정 조건 설정을 위한 모의 준휘발성 핵분열생성물의 휘발거동 특성 평가

이재원, 윤여완, 신진명, 박장진, 이정원
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150
niwlee@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로 전처리공정인 휘발성 산화공정에서 의해서 Cs 핵종제거는 후속 전해환원공정, 염폐기물 처리공정의 방사선 부하를 감소 시켜주며, Tc, Mo, Ru, Rh와 같은 noble metal의 사전 제거는 전해정련공정의 부하를 감소 시켜준다. 금속식출물을 생성하는 Tc, Mo, Ru, Rh는 평형증기압이 매우 낮아 평형증기압이 높은 산화물로 전환한 후에 휘발 제거가 필요하다. 본 연구에서는 휘발성 산화공정 조건을 설정하기 위해서 평형증기압이 낮은 화합물을 선정하여 압력, 온도 및 시간에 따른 휘발특성을 분석하였다.

2. 실험

Mo, Ru, Rh 분말입도에 따른 산화거동 특성 분석은 열중량분석기를 이용하여 산소분위기하 500~1000°C에서 5시간동안 수행하였다. 준휘발성 핵분열생성물의 평형증기압을 계산한 결과(그림 1) 평형증기압이 낮은 Cs_2MoO_4 , RuO_2 , Rh_2O_3 를 선정하여 1000~1200°C의 공기, 산소, 감압 분위기하에서 5시간동안 휘발실험을 수행하였다.

3. 결과 및 토의

준휘발성 핵분열생성물의 평형증기압은 $Tc_2O_7 > Cs > Cs_2O > Cs_2O_2 > CsBr > CsI > MoO_3 > TeO_2 > RuO_2 > Cs_2Te > Cs_2MoO_4 > Cs_2UO_4$ 순서였다(그림 1). Mo, Ru, Rh분말을 이용하여 500~1000°C의 산소분위기에서 5시간동안 산화 실험을 수행한 결과에 의하면 산화율은 $Mo > Ru > Rh$ 순서였다(그림 2). 입도 0.27 μm Mo는 500°C에서 4시간이내 100% 산화되었으며, 입도 0.02 μm Ru는 700°C에서 1시간이내 89% 산화되며 형성된 산화층에 의해 더 이상 산화되지 않았다. 입도 0.08 μm Rh는 800°C까지 산화율이 84%까지 증가되며 700°C에서 5시간동안 74% 산화되었다. 산화장치 재질로 추천되는 INCONEL 합금의 장기 산화부식 안정성과 산화실험 결과를 고려하여 산화온도는 700°C로 하였다. 산소 및 공기분위기에서 휘발율은 $Cs_2MoO_4 > RuO_2 > Rh_2O_3$ 순서이며, RuO_2 의 경우에는 산소분위기에서 휘발율이 높고, Rh_2O_3 는 거의 휘발되지 않았다(그림 3). 1200°C에서 Cs_2MoO_4 의 휘발율은 22 %/hr로 5시간이내 완전히 휘발되며, RuO_2 의 휘발율은 15 %/hr로 5시간동안 75% 휘발하였다. 휘발율이 낮은 RuO_2 와 Rh_2O_3 에 대하여 1000~1200°C의 감압(0.76~76 torr)분위기에서 5시간동안 휘발실험을 하였다. Rh_2O_3 는 감압분위기에서 열분해에 의해 Rh로 전환되어 거의 휘발되지 않았다(그림 4). RuO_2 는 0.76 torr에서는 열분해에 의해 Ru로 전환되어 거의 휘발되지 않았으나, 1200°C의 7.6~76 torr에서는 3시간이내 완전히 휘발되었다(그림 5). 따라서, 휘발성 산화공정 조건을 1200°C, 7.6~76 torr, 3시간으로 하면 Tc_2O_7 , Cs, Cs_2O , Cs_2O_2 , CsBr, CsI, MoO_3 , TeO_2 , RuO_2 , Cs_2Te , Cs_2MoO_4 는 휘발제거가 가능함을 알 수 있었다.

사 사

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

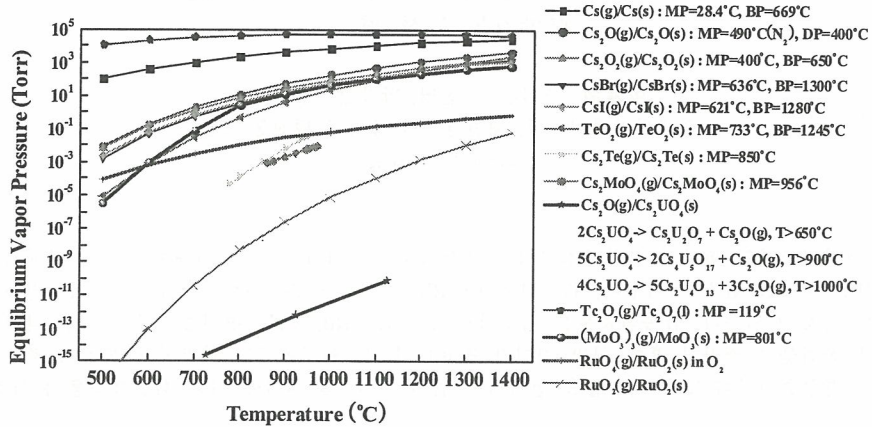


그림 1. 준휘발성 핵분열생성물의 평형증기압

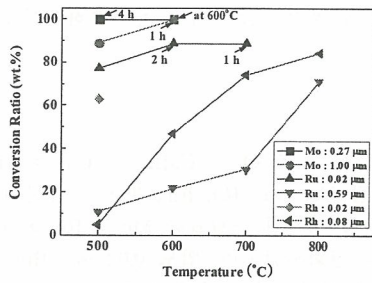


그림 2. 금속분말의 산화율

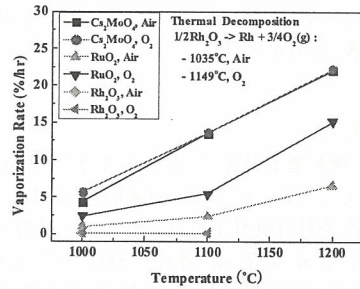


그림 3. 산소분압에 따른 휘발속도

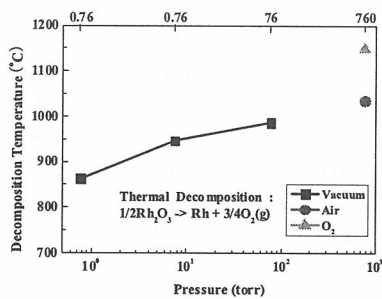


그림 4. 압력에 따른 Rh₂O₃의 열분해

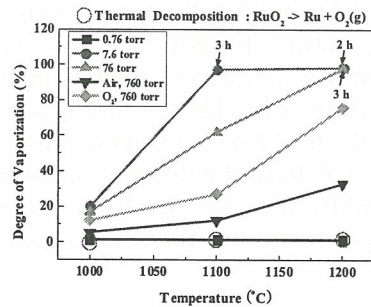


그림 5. 압력에 따른 RuO₂의 휘발량