

Zircaloy-4 피복관의 500 °C 산화특성 연구

최용택, 이유리, 전민구, 이창화, 강권호, 박근일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

ytchoi@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료(SNF, spent nuclear fuel)의 재활용 과정에서 연료봉 인출, 절단 및 탈피복 공정에서 폐 피복관(Hull)이 발생한다. 여기서 분리된 폐 피복관은 SNF 원료 물질 대비 약 24 wt.%를 차지할 정도로 많은 비중을 차지한다. 하지만, 전처리 공정에서 발생하는 폐 피복관은 피복관 내부로 침투한 다양한 핵분열 생성물 및 완전히 제거되지 않고 남아있는 잔류 SNF등으로 인해 중저준위 폐기물로 처리가 어렵다. 하지만 최근에 폐 피복관의 Zr을 회수 할 수 있는 기술로 화학적 반응을 이용한 염소화법, 전기화학적 반응을 이용한 전해정련법이 연구되고 있다. 파이로 프로세스와 같은 건식 탈피복 공정에서는 산화 탈피복 공정을 거치게 된다. LOCA 조건에서의 연구는 활발히 보고되고 있는 반면, 저온에서 Zircaloy-4의 산화특성에 대해서는 자료가 충분하지 않다[1-3].

본 연구에서는 사용후핵연료를 재활용하기 위한 과정에서의 폐 피복관에 관한 연구를 위하여 일정한 조건하에서 산화시간이 Zircaloy-4의 산화에 미치는 산화특성에 대한 연구를 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

본 실험에서는 피복관의 산화 실험을 수행하기 위해 피복관을 Box-Furnace를 이용하여 500°C, 공기 분위기 하에서 산화에 의한 질량변화를 시간에 따라 측정하였다. Hull은 외경 10.65mm, 내경 9.45mm, 길이 약 50mm에 질량 약 6.46 ~ 6.51g 으로 준비하였고, 온도 500°C에서 5, 10, 24, 72, 168, 336시간까지 질량변화를 측정 하였다. 또한 각 산화시간별 산화막의 두께의 측정은 각 시편에 대해 임의의 네 영역에서 SEM 관찰을 통해 측정하였고 평균 두께를 환산한 후 계산하여 비교 하였다.

2.2 결과 및 논의

산화 실험 전/후의 피복관의 형상 변화를 그림 1에 나타내었다. 5, 10, 24시간 산화한 피복관의 경우에는 검은색을 띄었으며 산화시간이 증가할수록 광택이 사라지는 것을 관찰 할 수 있었다. 하지만 72시간이상 산화한 피복관의 경우에는 산화 시간이 길어질수록 갈색으로 변화하는 것을 확인 할 수 있었다.

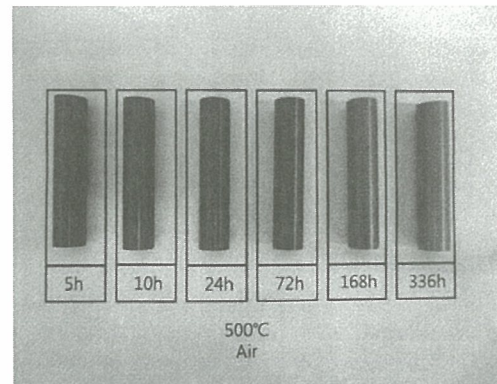


Fig. 1. Surface appearances of Zircaloy-4 hulls after oxidation testings at 500°C.

산화시간별 피복관의 질량 변화량과 SEM을 이용하여 측정된 산화시간 변화에 따른 산화층 두께의 변화를 그림 2에 나타내었다.

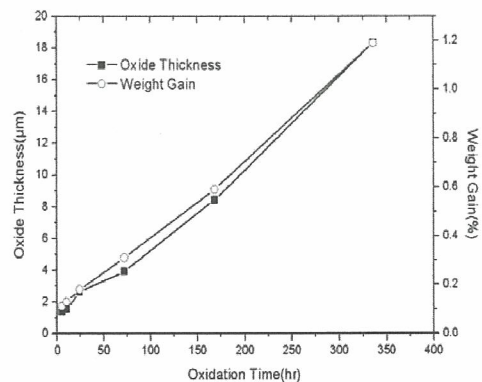


Fig. 2. Comparison of oxide thickness and weight gain as a function of oxidation time.

그림 2에서 볼 수 있듯이, 산화 시간이 증가함에 따라 질량변화량과 산화막의 두께가 각각 선형적으로 증가함을 알 수 있었고, 산화시간에 따른 산화막의 두께는 산화되어 증가한 피복관의 질량변화량과 관계있음을 확인 할 수 있었다.

그림 3에는 질량변화량과 산화막의 두께의 관계를 나타내었다. 그림 3에서의 Zircaloy-4 피복관의 산화막 두께와 산화 후 질량변화량의 그래프를 보면 선형관계인 둘 사이의 기울기 통하여 질량변화량을 알면 산화막의 두께를 예측 할 수 있음을 알 수 있다.

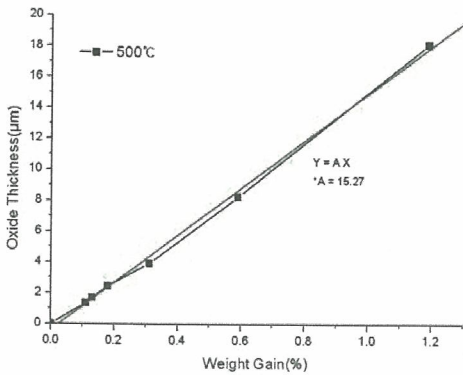


Fig. 3. Weight gain versus Oxide thickness of Zircaloy-4 hulls oxidized in air at 500°C.

앞의 그림 2,3의 산화막의 두께와 질량변화량의 관계와 기울기를 통하여 아래와 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$\text{Weight gain}(\%) = \frac{\Delta W}{W_0} \times 100 \dots\dots\dots(1)$$

$$\text{Oxide thickness}(\mu\text{m}) = \alpha \times \text{Weight gain}(\%) \quad (2)$$

$$*\alpha = 15.27$$

3. 결론

산화시간이 Zircaloy-4 피복관의 산화막 두께에 미치는 영향에 대한 연구를 수행하여, 산화시간-산화막 두께-질량변화량의 상관관계를 구하였으며, 이를 통하여

$$\text{Oxide thickness}(\mu\text{m}) = 15.27 \times \text{Weight gain}(\%)$$

의 상관관계를 구하였다.

4. 참고문헌

- [1] F. Nagase, T. Furuta, M. Suzuki, J. Nucl. Sci. Technol. 40 (4) (2003) 213.
- [2] S. Leistikow, G. Schanz, Nucl. Eng. Des. 103 (1987) 65.
- [3] B. Cox, Advances in Corrosion Science and Technol. 5 (1976) 173.