

Cesium oxides와 Uranium Oxides 반응연구

김중구, 장은실, 박양순, 하영경, 송규석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

njgkim@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료의 피복관 및 UO_2 pellet 사이 (gap) 에 2차상으로 발견되는 Cs-U-O 화합물은 핵분열생성물인 Cesium compounds와 핵연료 매트릭스인 UO_2 와의 반응생성물이다. 이 Cs-U-O 화합물은 물에 대한 용해도 등 핵연료 매트릭스인 UO_2 와 전혀 다른 화학적 특성을 가지므로 사용후핵연료의 저장 관리상 source terms을 고려할 때 관심을 갖게 한다 [1, 2].

이 연구는 Cesium compounds와 UO_2 간의 Cs-U-O 화합물 생성반응의 이해를 목적으로, Cesium compounds로 Cesium oxides를 사용하고 반응물의 무게를 조절하여 Cs/U 비를 변화시키면서 두 반응물간의 반응거동을 열분석기(TG-DSC)와 화학분석 방법에 의해 측정하였다.

2. 본론

2.1 Cesium oxides의 특성 측정

UO_2 와의 반응 시험에 앞서 시험에 사용한 Cesium oxides의 특성을 열분석기로 측정하였다(Fig. 1).

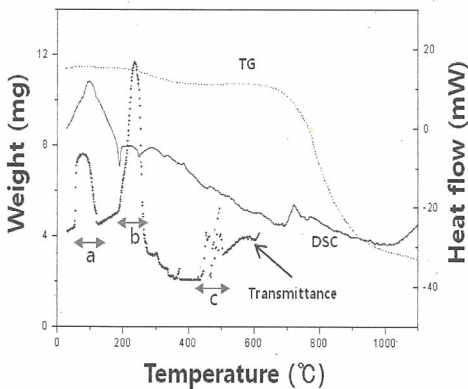


Fig. 1. Cesium oxides의 TG-DSC curves 및 가열에 따른 빛투과 측정결과 .

열분석기의 DSC curve는 Cesium oxides의 녹는 온도, 휘발온도 등 상변화에 대한 정보를 주지만 Fig1.의 DSC curve 만으로는 명확한 해석이 어려워 보조적 방법으로 가열에 따른 빛투과도 측정방법(Fig. 2)을 적용하였으며 그 결과를 Fig. 1에 포함시켰다.

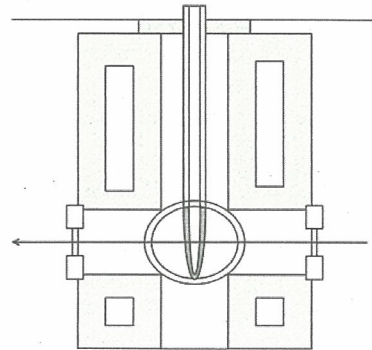


Fig. 2. 가열에 따른 빛투과측정 장치.

2.2 Cs/U 비에 따른 Cesium oxides 와 uranium oxides 반응 측정

반응물로 Cesium oxides와 UO_2 시료의 무게를 적절하게 취하여 혼합한 결과 Cs/U 비가 0.86, 1.30, 1.74, 2.18, 2.60, 3.46의 혼합물을 제조하여 Ar 분위기, $50^{\circ}C \rightarrow 1100^{\circ}C$ ($5^{\circ}C/min$ 승온) 조건에서 TG-DSC를 측정하였다 (Fig. 3, 4).

2.3 Cs/U 비에 따른 Cesium oxides 와 uranium oxides 반응 정도측정

pH2 정도의 수용액에 Cesium oxides와 UO_2 반응에 의해 생성되는 Cs-U-O 는 녹는 반면 반응하지 않은 미반응 UO_2 는 pH2 수용액에 불용성임을 이용하여, pH2에 녹은 U의 양을 화학분석(ICP)하여 Cesium oxides와 UO_2 간의 반응도를 측정할 수 있었다. Cs/U 비에 따른 Cesium oxides와 UO_2 시료간의 반응도를 측정하였다 (Table 1).

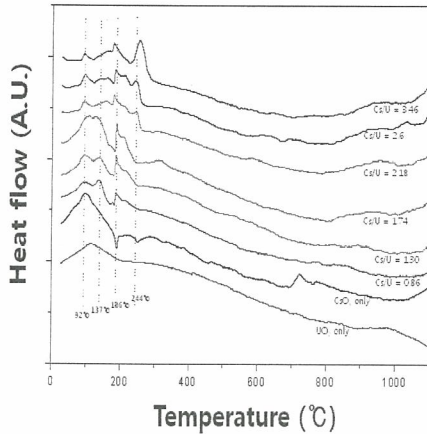


Fig. 3. Cs/U 비에 따른 DSC 측정결과.

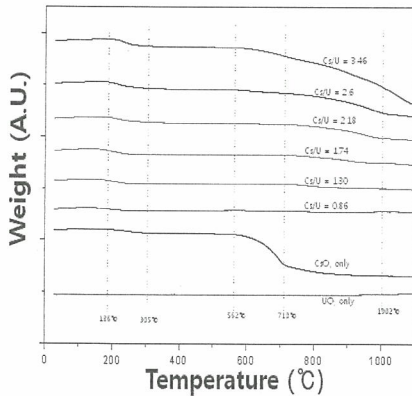


Fig. 4. Cs/U 비에 따른 TG 측정결과.

Table 1. Cs/U 비에 따른 반응도.

Cs/U (원자비)	0.86	1.30	1.74	2.18	2.6	3.46
초기 UO ₂ (g)	0.0138	0.0138	0.0135	0.0140	0.0140	0.0143
초기 U (g)	0.0122	0.0122	0.0119	0.0123	0.0124	0.0126
용해된 U (g)	0.0060	0.0075	0.0091	0.0105	0.0114	0.0122
반응정도 (%)	49	61	76	85	92	97

3. 결과

이 연구에서 사용한 Cesium oxides의 TG 측정결과에 의하면 200°C~300°C, 650°C~1000°C 두 영역에서 휘발하는 특성을 갖었고, DSC 및 빛투과 측정결과에 의하면 Fig 1. 의 a(~100°C), b(~230°C), c(~450°C) 영역에서 시료가 녹는 것으로 추정된다.

그리고 이러한 여러 영역에서의 휘발 및 녹는 특성으로 사용한 Cesium oxides가 단일한 화학종(species)이 아니고 여러 화학종들의 혼합물임을 추정할 수 있다.

Cs/U 비에 따른 DSC curves들을 UO₂ only, Cesium oxides only curves들과 비교할 때 200°C~300°C에서 Cs/U비에 따라 변화하는 peak들로 이 영역에서 UO₂ 와 Cesium oxides 간의 어떤 반응이 있음을 추정할 수 있다.

Cs/U 비에 따른 TG curves들을 UO₂ only, Cesium oxides only curves들과 비교할 때, Cs/U 비가 0.86 ~ 2.18 에서는 650°C에서 시작하는 Cesium oxides의 휘발특성이 보이지 않는데 이는 Cs/U 비가 0.86 ~ 2.18 에서는 반응에서 Cesium oxides가 소진되어 남아 있지 않기 때문으로 추정된다. Cs/U 비가 2.6, 3.46 가 되면 휘발특성이 보이는 이는 Cs의 양이 U에 대해 많기 때문으로 추정되며 이로써 Cs/U 비에 따른 반응정도를 추정할 수 있었다. 이러한 결과를 화학분석에 의한 결과(Table 1)와 비교 분석 중이다.

4. 감사의 글

이 연구는 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국과학재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다. (연구과제 관리코드: M20703010003-08M0301-00310)

5. 참고문헌

- [1] S. Van den Berghe, A. Leenaers, B. Vos, L. Sannen, M. Verwerft, "Observation of a pellet-cladding bonding layer in high- power fuel", Seminar Proceedings, *Pellet-clad interaction in water reactor fuels*, Aix-en-Provence, France, March9-11, 2004, 265-272 (OECD 2005, NEANo.6004).
- [2] 김종구, 박양순, 하영경, 송규석, "Cs₂O와 Uranium Oxides 반응에 의한 2차상 Cs-U-O t생성" 한국방사성폐기물학회 2012 추계학술발표회 (2012).