

핵연료재료의 플라즈마 가속산화반응을 위한 산소플라즈마의 광학적 진단

김정민, 채산, 김용수, 전상환*

한양대학교, 서울특별시 성동구 왕십리로 222

*㈜에이치엔에너테크, 서울특별시 성동구 왕십리로 222 한양종합기술연구원 513-2

yongskim@hanyang.ac.kr

1. 서론

우라늄의 핵주기 기술에는 여러 단계의 환원과 산화과정이 반복된다. 종래의 방식에서 이들 반응은 주로 습식 공정에서 이루어지거나 매우 높은 온도에서 이루어질 수밖에 없었다. 이러한 공정에 반응성 플라즈마를 이용한 건식공정을 도입하면 습식공정과 달리 2차폐기물의 발생을 획기적으로 줄일 수 있을 뿐만 아니라 플라즈마 반응 자체가 촉매반응이므로 낮은 온도에서도 매우 높은 반응률을 유지할 수 있어 여러 단계의 공정을 단순화시키면서도 공정의 신뢰성과 안전성을 획기적으로 끌어 올릴 수 있다.

그러나 플라즈마 기체 이용 건식 공정의 후행 핵주기 적용 연구는 국제적으로 초기 개발 단계로 다양하고 많은 연구가 이루어지지 못하고 있다. 앞선 연구의 대부분은 근본적인 메커니즘 규명 등의 연구보다는 성공사례 보고와 같은 경향을 띄고 있어 핵주기 기술의 핵심인 핵연료물질의 플라즈마 공정에 대한 기초적인 연구를 수행하였다. 또한 대량의 2차 폐기물 발생과 핵확산의 위험성으로 습식공정의 적용이 엄격히 제한되고 있는 현실에 비추어 볼 때 매우 의미 있는 연구라 할 수 있다[1].

이번 연구에서는 산화우라늄의 제조과정을 포함한 핵주기 기술에 관련된 핵연료물질의 산화 가속화 실험의 공정 조건을 도출하기 위해 아르곤기체 첨가 산소플라즈마에 대해 OES(Optical Emission Spectroscopy) actinometry 기법을 이용한 진단실험을 수행하였다.

2. 실험

2.1 실험 장치

실험 장치는 RIE(reactive ion etching)장치를 플라즈마의 광학적 진단을 위한 목적으로 개조하여 사용하였다. Fig. 1과 같이 샤워헤드 상단으로부터 플라즈마 기체가 주입되고 샤워헤드와 전극

판 사이에 r.f power가 작용하여 플라즈마가 발생하게 된다. r.f power는 최대 600W까지 발생된다. 전극판 하단 부분에는 최대 800℃까지 가열할 수 있는 할로겐램프 히터를 장착하였다. 샤워헤드와 전극판 사이는 상하로 10cm까지 조절이 가능하도록 설계 하였다. 실험에 사용된 산소 기체는 99.999%의 고순도 기체를 사용하였으며 정밀한 유량을 측정하기 위하여 정밀유량조절기를 사용하였다[2].

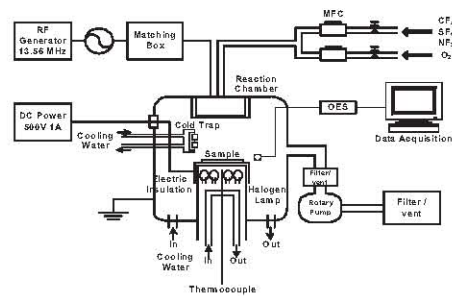


Fig 1. Schematic of cold plasma reactive ion etching apparatus.

2.2 실험방법

실험을 수행하기 전에 로터리 펌프를 이용하여 10⁻³Torr까지 진공을 확보 한 후 할로겐램프를 이용하여 실험의 목적에 맞게 온도를 400℃ 까지 상승 시켰다. 그리고 정밀유량조절기를 이용하여 산소기체를 50sccm 주입시킨 뒤 실험조건에 따라 각각 r.f power는 30-120 W, 압력은 0.5-3 Torr로 조절하였다. 아르곤기체는 산소기체의 2%를 첨가 하였다. 전극의 간격은 2.5cm으로 고정 하였고, 이때 측정된 산소와 아르곤의 강도를 이용하여 (1)과 같은 식으로 산소원자의 상대적인 농도를 측정하였다[2].

$$\frac{I_O}{I_{Ar}} = \frac{k_O n_O \eta_O}{k_{Ar} n_{Ar} \eta_{Ar}} = K \frac{n_O \eta_O}{n_{Ar} \eta_{Ar}} \quad (1)$$

여기서 I는 intensity, K는 비례상수이고 n은 기저 상태 농도이며 η 는 여기효율(excitation efficiency)이다.

이때 $n_O/n_{Ar}=1$ 이라면 (2)와 같은 식으로 나타낼 수 있다.[2]

$$n_O \propto \frac{I_O}{I_{Ar}} n_{Ar} \quad (2)$$

산소의 기저상태 농도는 산소와 아르곤의 Intensity의 상대적인 비율에 아르곤의 농도를 곱한 값에 비례하게 된다.

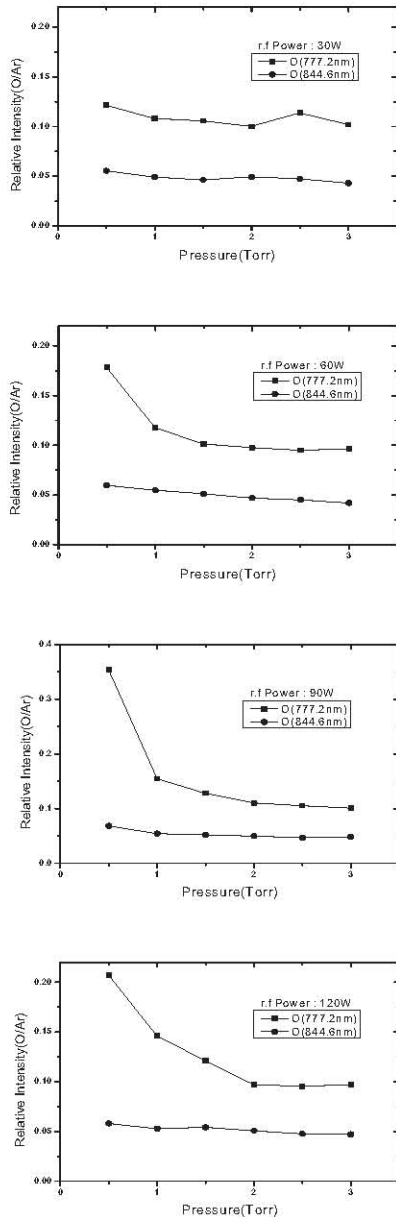


Fig. 2. spectral intensities as a function of pressure of oxygen atomic.

3. 결과 및 토의

실험 결과 산소와 아르곤의 강도의 상대적인 비를 분석하면 r.f power가 일정 할 때 압력이 0.5 Torr에서 산소/아르곤의 강도가 가장 높은 것을 알 수 있었으며 압력이 높아질수록 상대적인 강도가 낮아지는 것을 볼 수 있다.[3] 특히 r.f 출력이 90 W이고 압력이 0.5 Torr인 경우 다른 조건들에 비해 산소의 농도가 높게 나타났다.

4. 결론

본 연구에서는 산소 플라즈마 농도에 대해 압력과 r.f 출력과의 관계를 알아보기 위한 실험을 수행하였다. 실험 결과, 0.5 Torr에서 산소 플라즈마 농도가 최대를 나타내었고, 압력이 높아질수록 산소 플라즈마 농도가 감소하는 경향을 보였다.

이는 압력이 높아질수록 플라즈마 입자의 평균자유행로가 짧아지게 되는 것에 기인하게 되는데, 플라즈마 출력에 의해 충분히 가속 될 수 있는 에너지를 얻지 못하게 되므로 플라즈마를 활발하게 발생시키지 못하여 산소 플라즈마의 농도가 낮아지는 것으로 볼 수 있다.

이번 연구결과를 통하여 얻은 공정조건을 이용하여 핵연료 물질의 본격적인 산화가속화 실험이 진행될 예정이며 종전 연구결과에 비해서 더욱 가속화된 결과를 낼 수 있을 것으로 예상 된다.

5. 참고문헌

- [1] Sanghwan Jeon, Kyungmin Kim, San Chae, Yongsoo Kim, A Study on the Accelerated Oxidation of Uranium Dioxide in Oxygen Plasma, 한국원자력학회 춘계학술대 논문집, 301-302, 2011.
- [2] J. W. Coburn, M. Chen, Optical emission spectroscopy of reactive plasmas: A method for correlating emission intensities to reactive particle density, J. Appl. Phys., Vol. 51, No.6, 3134-3136, 1980.
- [3] Uros Cvelbara, Niksa Krstulovic, Miran Mozetic, Inductively coupled RF oxygen plasma characterization by optical emission spectroscopy, Vacuum 82, 224 - 227, 2008.