

산화 처리된 Zirlo 피복관의 염소화 반응 거동 연구

허철민, 전민구, 이창화, 이유리, 강권호, 김용호, 박근일
 한국원자력연구원, 대전 유성구 대덕대로 989번길 111
rcnmini@kaeri.re.kr

1. 서론

전력생산에 따른 원자력발전의 비중이 점점 높아지고 있다. 따라서 사용후핵연료의 양도 늘어감에 따라 사용후핵연료의 처리에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 한국원자력연구원에서는 전기화학적으로 U 및 TRU를 회수하여 핵비확산성을 확보할 수 있는 파이로공정에 대한 연구가 진행되고 있다 [1, 2]. 파이로공정의 전처리 공정에서는 사용후핵연료 집합체의 분리/해체 작업 후 산화 탈피복 공정을 통해 핵연료 물질과 폐 피복관을 분리하게 된다. 이때 발생하는 폐 피복관의 양은 핵연료 물질 대비 약 25 wt.%를 차지한다. 또한 폐 피복관 내부로 침투한 핵분열 생성물 및 산화층에 남아있는 잔류 사용후핵연료 등으로 인해 중저준위 폐기물로 인수 기준에 적합하지 않다[3].

따라서 한국원자력연구원에서는 산화탈피복 후 회수된 폐 피복관의 효율적인 처리를 위해 Zr을 회수하는 방법에 대한 연구를 진행하고 있다. 피복관의 주 성분인 Zr은 피복관의 주요 소재인 Zircaloy 또는 Zirlo의 98 wt.% 이상을 차지하기 때문에 Zr을 회수하여 중저준위 폐기물로 처리하거나 재활용할 경우 자원 재활용과 고준위폐기물 양의 감소에 큰 효과가 있을 것으로 기대된다.

폐 피복관의 여러 처리 방안 중 염소화 공정은 금속 Zr을 염소 기체와 반응시켜 $ZrCl_4$ 를 합성함으로써 Zr을 분리 및 회수하는 방법이다. $ZrCl_4$ 는 비점이 331 °C로 낮아 분리 및 회수가 용이할 것으로 예상되고 있지만 현재까지 다양한 연구가 수행되지 못하여 보다 많은 연구가 필요하다.

앞서 본 연구팀에서는 HSC chemistry code를 이용한 열역학적 계산 및 기초 실험을 통해 염소화 공정을 통한 Zr 회수 가능성을 선보인 바 있다 [4-7].

본 연구에서는 산화된 Zirlo 피복관의 염소화 반응 거동에 대한 연구를 수행하였다. 파이로공정에서는 사용후핵연료의 경우 산화탈피복 공정을 거친 후 염소화 공정에 사용되기 때문에 피복관

의 표면에 산화막이 형성되어있다. 따라서 산화된 zirlo 피복관의 염소화 반응 실험을 통해 산화탈피복 후 폐 피복관의 염소화 적용 가능성을 검토하였다.

2. 본론

2.1 실험방법

본 연구에서는 zirlo 피복관을 산화탈피복 조건인 500 °C, 10 시간으로 산화시켜 염소화 반응 거동을 살펴보았다. 약 6 g 정도의 zirlo 샘플을 20 cc/min Ar + 10 cc/min Cl_2 기체를 사용하여 380 °C에서 2시간 동안 반응시켰다. 실험을 통해 반응 후 잔류된 zirlo 피복관과 반응 생성물의 양을 측정 하였다.

2.2 실험결과

그림 1은 fresh zirlo 피복관과 500 °C에서 10시간 동안 산화된 zirlo 피복관의 염소화 반응 전후 사진을 나타내었다. 그림에서 볼 수 있듯이, fresh zirlo와 500 °C에서 산화된 피복관은 염소 기체와 반응하여 $ZrCl_4$ 가 생성 및 분리되는 것을 확인하였다.

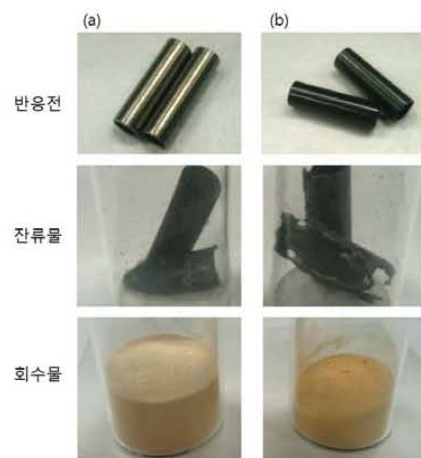


Fig. 1. Zirlo 피복관의 염소화 전후 사진. (a) Fresh zirlo, (b) 500 °C 10시간 산화.

Fresh 및 500 °C에서 산화된 피복관의 반응 후 질량 감소는 각각 66.7과 39.0 wt.%로 나타났다. 따라서, 산화된 피복관의 경우 염소화 속도가 fresh zirlo에 비해 상대적으로 낮아지는 것으로 보인다.

3. 결론

본 연구에서는 zirlo 피복관의 500 °C 산화 조건에서 염소화 반응 거동 변화를 관찰하였다. 본 연구팀에서 수행한 Zry-4 피복관으로 연구한 자료에 따르면 Fresh 및 500도에서 산화된 Zry-4 피복관의 경우 염소화 반응이 성공적으로 수행되었지만, 700도에서 산화된 시료의 경우 염소화 반응이 전혀 진행되지 않았다[7]. 따라서 zirlo 피복관의 경우에도 산화 조건에 따라서 염소화 반응이 달라질 것으로 예상 되기 때문에 600, 700 °C의 산화 조건의 추가적인 연구가 필요하다. 또한 염소화 반응 시간에 따른 ZrCl₄의 순도를 알아보기 위해 ICP-AES 분석을 수행 하려 한다.

4. 참고문헌

- [1] K. -C. Song, H. Lee, J. -M. Hur, J. -G. Kim, D.-H. Ahn and Y.-Z. Cho, Nuclear Engineering and Technology, Vol. 42, No. 2, pp.131-144, 2010.
- [2] H. Lee, G. -I. Park, K. -H. Kang, J. -M. Hur, J.-G. Kim, D.-H. Ahn, Y.-Z. Cho and E. H. Kim, Nuclear Engineering and Technology, Vol. 43, No. 4, pp.317-328, 2011.
- [3] T. S. Rudisill, J. Nucl. Mater., Vol. 385, pp. 193-195, 2009.
- [4] M. K. Jeon, J. W. Lee, K. H. Kang, G. I. Park, C. H. Lee, J. H. Yang and C. M. Heo, J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 289, pp.417-422, 2011.
- [5] M. K. Jeon, K. H. Kang, G. I. Park and C. H. Lee, J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 292, pp.285-291, 2012.
- [6] M. K. Jeon, K. H. Kang, G. I. Park and Y. S. Lee, J. Radioanal. Nucl. Chem., In press.

- [7] M. K. Jeon, K. H. Kang, C. M. Heo, J. H. Yang, C. H. Lee, G. I. Park, J. Nucl Mater., In press.