

고온열처리중 연료파편의 Cs 휘발 거동 분석

이재원*, 이도연, 이영순, 이광연, 양재환, 조용준
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*njwlee@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로공정의 전해환원용 원료물질은 전처리공정에서 제조 연구를 수행하고 있다. 원료물질의 형태는 사용후핵연료봉으로 부터 원료물질을 회수하는 방법에 따라서 달라지며, 회수방법으로 기계적탈피복 및 산화탈피복 방법이 있다. 연료물질은 기계적 탈피복 방법에 의해서 연료파편(fuel fragment), 산화탈피복에 의해서는 U_3O_8 분말 형태로 회수된다. U_3O_8 분말은 성형 및 고온열처리를 통해 다공성 펠렛 형태로 얻어지기 때문에 전해환원시에 메쉬형 바스켓을 적용할 수 있게 된다. 고온열처리를 하여 Cs, I, Te 핵종을 제거하면, CsI는 배기체처리시에 Cs는 석탄회 필터, I는 AgX 필터에 선택적으로 포집되며, 전해환원시에 반응성 높은 I 및 Te로부터 Pt양극의 보호, 고방열핵종인 Cs이 거의 축적되지 않기 때문에 염교체 주기가 길어지며, 박막결정화법에 의해 염을 정제하여 재활용할 수 있다는 장점이 있다. 연료파편이 분말화가 되지 않고 핵종 휘발제거율이 높은 조건은 O/U비가 2.20가 된다[1]. 본 연구에서는 기계적 탈피복에 회수된 연료파편의 크기별로 O/U비 조절 효과 및 온도에 따른 Cs 핵종의 휘발거동 거동을 분석하였다.

2. 실험

연료파편은 연소도 60 GWd/tU, 크기가 1-2 및 2-5 mm인 것을 사용하였다. O/U비가 2.20가 되는 평형상태 산소농도는 Lindemer와 Besmann [2]의 자료를 이용하여 계산하였다. 운반기체로 불활성의 알곤 가스를 사용하여, 산소와 알곤의 혼합기체의 공급은 등온구간에서만 하였다. 이는 승온 및 냉각시 산소분압이 높아서 펠렛이 과잉으로 산화(O/U비 \geq 2.25)되어 미립자가 발생하는 것을 방지하기 위한 것이다. Cs 핵종의 휘발거동은 감마스펙트رو미터를 사용하여 분석하였다.

3. 결과 및 토의

연료파편의 크기가 1-2 mm 사이인 것을 사용해서 승온속도를 5°C/min하여 1300°C, 10 시간 동안 산소농도를 260 ppm으로 열처리를 하는 중에 Cs 방출거동을 분석하였다. Fig. 1은 온도 및 시간에 따른 Cs 핵종의 방출거동을 나타낸 것으로 Cs 핵종의 휘발은 1100-1230°C 사이에서 개시되며, 그림의 곡선에서 맞춤형 1300°C로 도달할 시점에서의 Cs 제거율은 약 23%가 된다. 등온구간이 끝나는 10 시간 후에 Cs 핵종의 휘발제거율은 96%를 보였다. 그러나, 열처리된 연료파편을 관찰한 결과, 미세한 분말이 생성됨을 알 수 있었다 (Fig. 2).

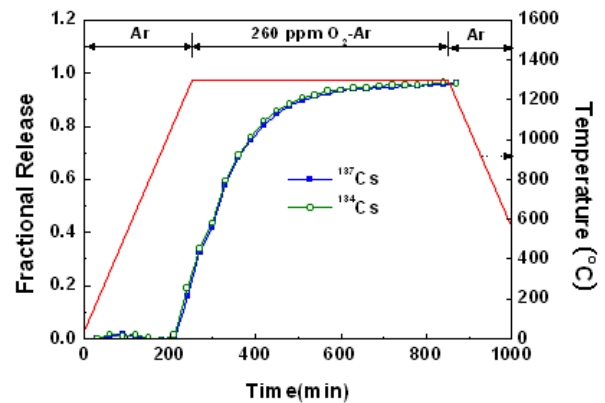


Fig. 1. Fractional release behavior of caesium from fuel fragments of 1-2 mm.

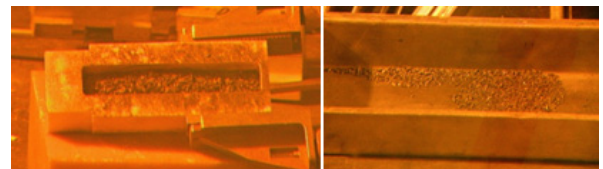


Fig. 2. Thermally pretreated fuel fragments.

연료파편 크기 및 온도의 영향, 연료파편의 파쇄를 방지하기 위해서, 연료파편의 크기가 2-5 mm 사이인 것을 사용해서, 승온속도는 1100°C까지는 5°C/min, 1100-1400°C 승온 구간은 2°C/min로 조

절하여 1400°C, 10 시간동안 산소농도를 824 ppm으로 열처리를 하는 중에 Cs 방출거동을 분석하였다.

Fig. 3은 온도 및 시간에 따른 Cs 핵종의 방출거동을 나타낸 것으로 Cs의 방출분율은 약 900-1320°C 범위에서는 감소하는데 이는 연료파편이 파쇄에 의해 미세입자로 변형되어, 미세입자가 연료파편사이로 통과하여 시료 용기 하부로 낙하되어 직경 3 mm의 collimator에 노출되어 Cs 계수가 증가에 의한 것으로 여겨진다.

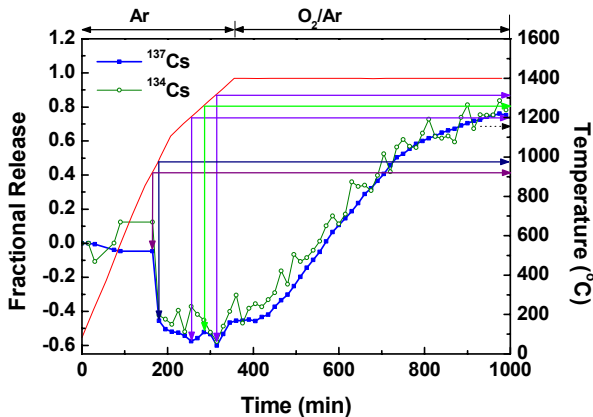


Fig. 3. Fractional release behavior of caesium from fuel fragments of 2-5 mm.

Cs의 방출분율 관점에서 연료파편의 변형을 세분화 하면, 연료파편의 1차 파쇄는 920°C에서 시작하여 1200°C에서 최대가 되며, 2차 파쇄는 1260°C에서 시작하여 1325°C에서 최대가 된다.

연료파편의 파쇄는 1400°C까지 알곤분위기하에서 이루어지기 때문에 산화에 의한 것은 아니며, 핵분열생성물의 방출에 의해 기인한 것으로 판단된다. Hiernaut등[3]은 초고연도(240 Gwd/tU)의 연료파편을 이용하여 승온속도를 10 및 30°C/min로 고온 진공분위기하에서 Knudsen 셀 질량분석기로 핵종휘발거동에 따른 연료파편의 거시 및 미시적 구조변화를 연구하였으며, 연료파편의 파쇄를 핵종방출거동과 연관지어 해석하였다. Kr 및 Xe과 같은 핵분열기체들은 4단계로 방출되며, 2단계(627-727°C) 및 3단계(1127-1227°C)에서 각각 20% 및 70%가 방출되며, 627 및 1227°C에서 열처리 된 시료의 조직을 분석한 결과, 연료파편이 파쇄된 것을 관찰하였으며, 핵종방출이 많아짐에 따라서 입자들이 보다 미세해짐을 관찰하였다. 즉, 2차에 걸쳐 연료파편의 파쇄가 일어나는 것으로 해석하였다. 또한 열처리동안 진공압력 변화를 보았으며, 2단계 및 3단계에서 증가함을 측정하였다.

이러한 결과를 토대로 연료파편의 파쇄는 고립 기공에 포획된 핵분열기체가 온도증가에 따라서 압력이 증가하여 급속도로 방출되는 버스트(burst) 방출에 의한 것으로 해석하고 있다.

또한 Hiernaut 등은 Cs 및 I의 방출분율의 차이는 동일한 온도로 3단계까지는 있지만 2단계에서는 약 10%, 3단계에서는 30%로 분석하였다. Hiernaut 등의 실험에 사용된 조건과 연소도 및 가열속도에는 차이가 있지만, 본 실험에서도 2차에 걸쳐서 파쇄가 일어나나 보다 고온에서 시작됨을 알 수 있었다.

Cs 핵종의 휘발제거율은 초기 계수치를 기준으로 75.2%, 2차 파쇄후 계수치를 초기 계수치로 교정한 후에는 84.5% 였다.

4. 결론

이상의 실험 결과로부터 연료파편의 파쇄방지와 핵종제거율을 증가시키기 위해서는 3단계의 등온 열처리공정이 필요한 것으로 평가할 수 있었다. 열처리공정의 등온단계는 1단계 : 900°C, Ar → 2단계 : 1250°C, Ar → 3단계 : 1450-1500°C, 1582-2928 ppm O₂/Ar로 설계할 수 있었으며 이에 대한 추가실험이 필요하다.

5. 감사의 글

이 논문은 2012년도 교육과학기술부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(원자력 기술개발사업, No. 2012M2A8A5025696).

6. 참고문헌

- [1] K. Shiba, J. Nucl. Mater., 57, 217-279 (1975).
- [2] T. B. Lindemer and T. M. Besmann, J. Nucl. Mater., 130, 473-488 (1985).
- [3] J.-P. Hiernaut, T. Wiss, J.-Y. Colle, H. Thiele, C.T. Walker, W. Goll, R.J.M. Konings, J. Nucl. Mater., 377, 313-324 (2008).