

플라즈마에 의한 핵연료 분말 산화

정인하, 류호진, 김종호, 조광훈, 송기관, 박장진

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

사용후핵연료를 에너지 자원으로 재활용하기 위하여 PUREX 공정과 같이 U 및 Pu를 분리하여 재활용하는 방법들이 개발되어 왔다. 이와 같은 기존의 처리방식은 습식공정이므로 다량의 폐기물이 발생하게 되며 핵확산저항성에 있어서도 문제점이 있다. 따라서 최근에는 핵확산저항성을 가지고 있으며, 공정 폐기물이 감소되는 건식처리기술을 이용한 사용후핵연료 재활용 기술이 각광을 받고 있다. 건식공정 중에서는 사용후핵연료의 산화-환원을 통하여 분말화한 다음 소결체를 제조하는 기술도 있다. 기존 공정의 경우, 산화 및 환원을 위한 열처리 시간이 길고 추가로 기계적 분쇄가 필요하므로 공정이 복잡하고 처리 시간이 오래 걸리는 등의 문제점이 있어 공정의 개선이 필요하다.

최근 전 세계적으로 플라즈마를 이용하는 재료공정에 대한 연구 및 개발의 비약적 발전이 있었으며, 플라즈마 이용기술은 높은 열 및 화학적 반응성, 공정 단순화 등의 장점 때문에 원자력 산업 분야에서도 각광을 받고 있다. 현재의 플라즈마 응용기술은 유리화, 건조, 식각 등에 이용되는 것이 대부분이나, 본 연구에서는 플라즈마의 높은 화학반응성을 이용하여 핵연료 건식 재가공 처리에 응용하고자 하였다.

UO₂ 분말 혹은 사용후핵연료 등의 산화-환원 등 기존의 열처리방식에 의한 화학반응 공정에 플라즈마를 응용할 경우 별도의 외부 가열장치 없이 화학반응을 유도할 수 있으며, 기존의 방식에 비하여 공정장치가 간단해지고, 유지·보수 횟수가 줄어들며, 공정시간도 크게 감소시킬 수 있는 장점이 있다.

실험에 사용한 분말은 농축도 0.71 wt.%의 ADU분말로 제조한 소결 밀도 95%의 펠렛을 막자로 분쇄한 입도 약 1~2 mm의 파쇄 분말을 사용하였다. 실험방법은 1)Furnace를 이용하는 기존의 UO₂ 분말 산화 모사실험, 2) 반응용기 회전에 의한 기-고 반응면적 증대효과, 3) Stainless steel ball 첨가에 의한 반응성 향상효과 등에 대하여 각각 실험하고, 그 결과를 서로 비교하였다. 실험의 변수는 플라즈마 power, stainless steel ball의 첨가 효과, Ar 및 산소 기체유량 및 반응시간 등을 변화시켰다.

아래의 그림 1은 플라즈마에 의한 분말의 산화 실험장치이며, 그림 2는 내경 약 10cm의 PYREX glass tube 내에 발생된 Ar 플라즈마 및 r.f.에 의해 금속구 사이에 유도된 전기 스파크, 그리고 이로 인하여 발생된 고밀도 플라즈마 사진이다. 전기 스파크는 분말의 분쇄효율을 40~100 배 정도 증가시키는 것으로 알려져 있다.

그림 3, 4 및 5에 각각의 실험조건에서 관찰한 분말의 사진을 나타내었다. 실험한 범위 내에서 플라즈마 power가 높을수록 분말화 속도가 빠른 것으로 관찰되었다. 이는 높은 플라즈마 power에서 보다 많은 양의 산소 이온이 생성되고 반응기 내부의 온도도 함께 상승하기 때문인 것으로 판단된다. 기존의 실험 결과가 반응온도 700°C 미만까지는 산화 속도가 증대된다는 결과로 판단해 볼 때 보다 power 용량이 큰 장치를 사용한다면 산화속도는 더욱 빨라질 것으로 판단된다. 또, stainless steel ball을 첨가함으로써 분말화 속도가 매우 빨리 진행될 수 있음을 확인하였다. 첨가한 stainless steel ball의 효과는 다음과 같다고 할 수 있다. 즉, 볼이 분말 표면을 마찰하게 되므로 이미 산화되어 밀도 및 입도가 작아진 분말이 제거되고 이로써, 새로운 반응면이 노출되므로 반응 기체의 접촉이 용이해지며, 볼과 볼의 틈새에서 기체의 체류시간이 증가되므로 산소 이온의 농도가 증가되며, 이 때문에 분말과 산소 이온과의 반응 시간이 증가되는 효과가 생기며, 볼의 크기가 작아서 큰 효과의 기대는 어려우나, ball의 하중에 의한 충격과 회전으로 인한 전단 응력이 가해지는 것으로 판단되며, 금속 재질인 볼은 세라믹 분말에 비하여 열용량 및 열전도도가 크므로

반응중 발생된 열을 흡수하여 반응열로 제공하는 것으로 판단되었다. 실험 조건 500W, Ar 50sccm, O₂ 5sccm, 200Torr, 20rpm의 조건에서 약 2시간 만에 산화분말의 크기는 1 μ m 미만의 크기를 나타내었다.

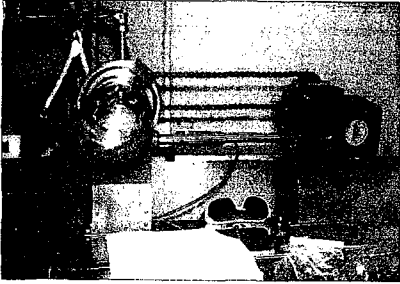


그림 1. 플라즈마 산화-환원 장치



그림 2. 반응기 내부에 생성된 Ar 플라즈마 및 전기스파크

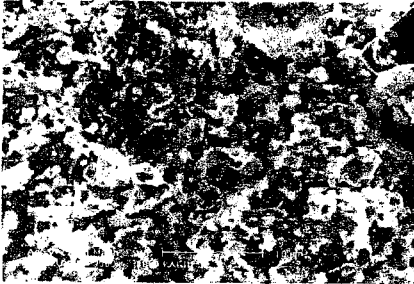


그림 3. Furnace를 이용하는 기존의 UO₂ 분말 산화 모사실험 (500W, Ar 50sccm, O₂ 5sccm, 200Torr, 1hr)

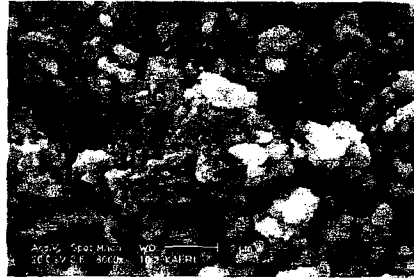


그림 4. 반응용기 회전으로 인한 기-고 반응면적 증대 효과 비교실험 (500W, Ar 50sccm, O₂ 5sccm, 200Torr, 20rpm, 2hr)

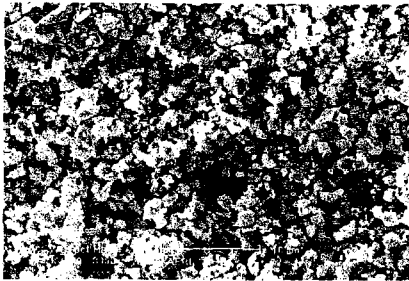


그림 5. Stainless steel ball 첨가에 의한 반응성 향상효과 (500W, Ar 50sccm, O₂ 5sccm, 200Torr, 20rpm, 2hrs)