

## 핵분열 생성 금속석출물계 단일성분 산화물의 최대 가능 증발속도 계산

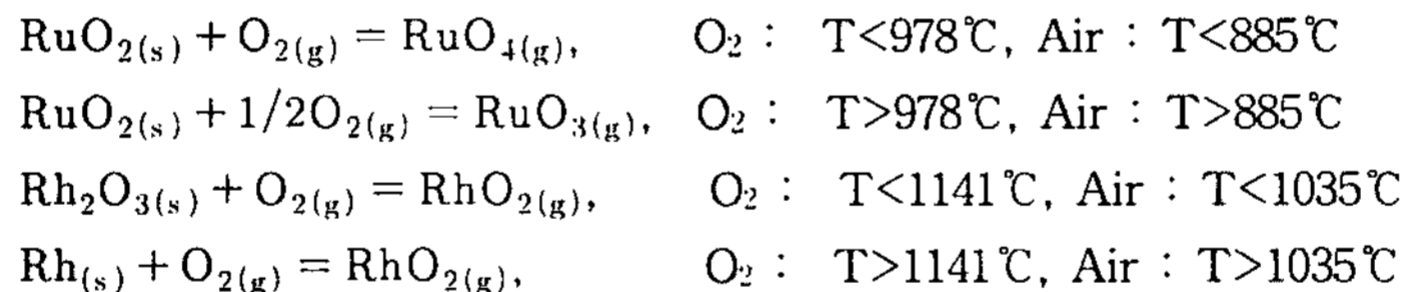
이재원, 이해원, 박근일, 박장진, 송기찬  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150  
[njwlee@kaeri.re.kr](mailto:njwlee@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

사용후핵연료내 금속석출물을 생성할 수 있는 고용점 금속원소(Mo, Tc, Ru, Rh, Pd)는 핵분열생성물의 약 19 wt.%를 차지한다. 한국원자력연구원에서는 이를 파이로 공정의 선행공정인 고온 휘발성 산화공정(advanced voloxidation process)에서 제거하기 위한 연구를 수행 중에 있다. 고용점 금속이 산화될 경우에는 일부 산화물의 융점 및 증기압이 낮아지기 때문에 공기 및 산소와 같은 반응성 기체를 이용하여 금속석출물을 산화시킨 후 1000~1400°C에서 공기 및 산소 또는 진공하에서 휘발 제거할 수 있다. 본 연구에서는 단일성분의 산화물에 대하여 열처리분위기에 따른 평형증기압을 계산한 후에 이를 이용하여 최대 가능 휘발속도를 계산하였다.

### 2. 평형증기압 및 휘발거동

준휘발성 단일성분 산화물 및 금속의 평형증기압을 열역학적 데이터베이스인 HSC의 Gibbs 자유에너지(또는 평형상수) 자료를 이용하여 산소 및 공기분위기에 따라서 계산하였으며 그 결과를 그림 1에 나타내었다. 준휘발성 Mo, Tc, Pd(847°C 이상) 산화물의 평형증기압은 산화분위기와는 관계가 없으나, Ru, Rh 산화물의 평형증기압은 산소분위기일 때가 높음을 알 수 있었다. RuO<sub>2(s)</sub>는 약 1000°C 이상에서는 RuO<sub>3(g)</sub>로 휘발되며, Rh<sub>2</sub>O<sub>3(s)</sub>는 고온에서는 Rh<sub>(s)</sub>로 환원되나 모두 RhO<sub>2(g)</sub>로 증발됨을 알 수 있다.



고용점 금속원소의 휘발제거율을 높이기 위한 열처리 분위기는 산소분위기가 가장 우수하며 평형증기압의 크기는 Tc<sub>2</sub>O<sub>7(g)</sub> > (MoO<sub>3</sub>)<sub>3(g)</sub> > RuO<sub>3(g)</sub> 또는 RuO<sub>4(g)</sub> > RhO<sub>2(g)</sub> > Pd<sub>(g)</sub>로 열처리 온도를 조절할 경우에 평형증기압 순서대로 선택적 휘발제어가 가능함을 알 수 있었다. 특히 장수명 핵종인 Tc의 산화물인 Tc<sub>2</sub>O<sub>7(s)</sub>는 융점이 119°C로 매우 낮고, 311°C에서 Tc<sub>2</sub>O<sub>7(g)</sub>의 포화증기압이 101.3 kPa로 매우 휘발성이 높음을 알 수 있다.

### 3. 최대 가능 휘발속도

평형증기압 자료를 이용하여 최대 가능 몰 휘발속도( $J_{\max}$ , maximum possible mol vaporization rate)는 Hertz-Langmuir 식(식 (1))에 의해 계산할 수 있다.  $J_{\max}$ 는 응축이 일어나지 않는 경우로 순 휘발속도(net vaporization rate)를 나타낸다. M<sub>x</sub>O<sub>y(g)</sub>로 휘발될 경우 금속성분 M의 최대 가능 질량 제거속도( $k_{\max}$ )는 식 (2)에서 계산할 수 있으며, 고용점 금속원소의 최대 가능 질량 제거속도 계산결과를 그림 2에 나타내었다.

$$J_{\max} = P_{e,i} \left( \frac{1}{2\pi M_i RT} \right)^{1/2}, \quad (\text{mol/cm}^2 \cdot \text{sec}) \quad (1)$$

$$k_{\max} = \frac{M_i}{x} J_{\max} \cdot (\text{g/cm}^2 \cdot \text{sec}) \quad (2)$$

최대 질량 제거속도는 Tc ≫ Mo ≫ Ru ≫ Rh, Pd의 순서로 현저한 제거속도의 차이를 보였으며, 열처리 온도를 조절함으로써 고융점 금속원소의 선택적 제거가 가능함을 보였다.

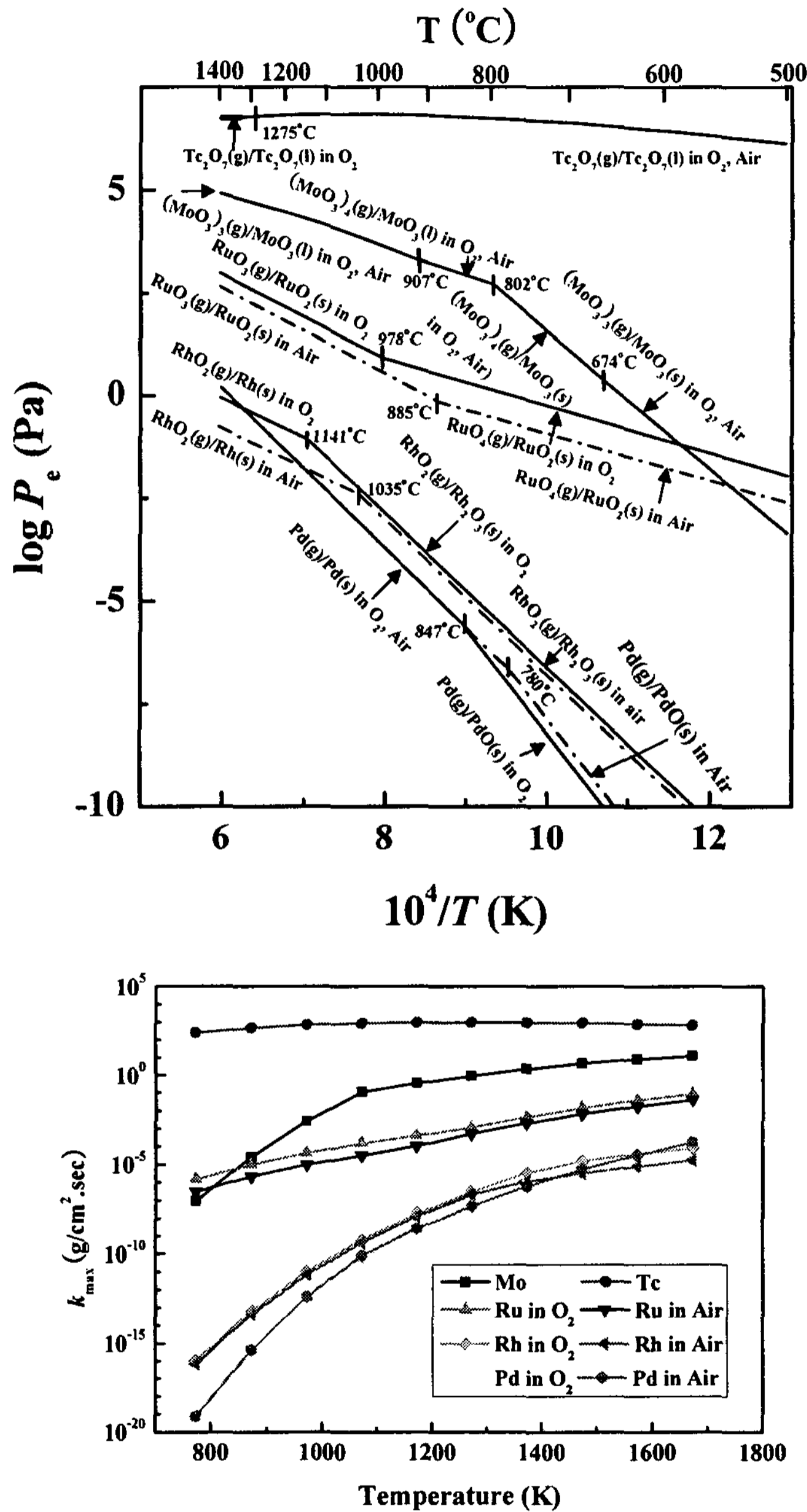


그림 1. 최대 가능 질량 제거속도

사 사

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.