

## SFR 금속핵연료의 TRU 휘발 및 산화 거동 분석

류호진, 오석진, 김기환, 이종탁, 박근일, 이찬복  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045  
[hjryu@kaeri.re.kr](mailto:hjryu@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

고속로 핵연료로 사용되는 장수명 핵종 소멸처리용 금속핵연료는 장수명 핵종인 아메리슘, 넵티늄 등 마이너액티나이드를 함유하도록 설계된다. 장수명 핵종인 마이너액티나이드가 핵분열을 통하여 반감기가 짧은 핵분열 생성물로 변환되면 사용후핵연료 처분 부담이 크게 절감될 수 있다. 그러나 고온에서 마이너액티나이드를 함유한 금속핵연료의 용해 주조 시 증기압이 높은 아메리슘의 휘발이 예상되어 아메리슘의 휘발을 억제할 수 있는 용해 주조 방법의 개발이 필요한 실정이다. 기존 금속 핵연료 제조 방법은 Fig. 1과 같이 우라늄, 지르코늄, 플루토늄을 유도용해로에서 용해한 후 진공에 의한 압력차이를 이용하여 사출 주조를 하는 것으로 알려져 있다. 그러나 감압 시 아메리슘의 휘발이 더욱 활성화되어 장수명 핵종의 손실을 초래할 가능성이 있다. 또한 아메리슘은 산화성이 우라늄이나 지르코늄, 플루토늄보다 높아 용해 중 슬래그로 떠올라 핵연료심 성분에는 포함되지 않을 수도 있다. 따라서 아메리슘의 휘발 및 산화를 억제하는 것이 마이너액티나이드 함유 금속핵연료의 제조에서 가장 시급히 해결해야 할 문제로 대두되고 있다. 본 연구에서는 SFR 금속핵연료에 존재하는 원소들의 휘발거동 및 산화거동과 관계된 열역학 계산을 통해 이를 억제할 수 있는 방법을 도출하는데 기여하고자 하였다.

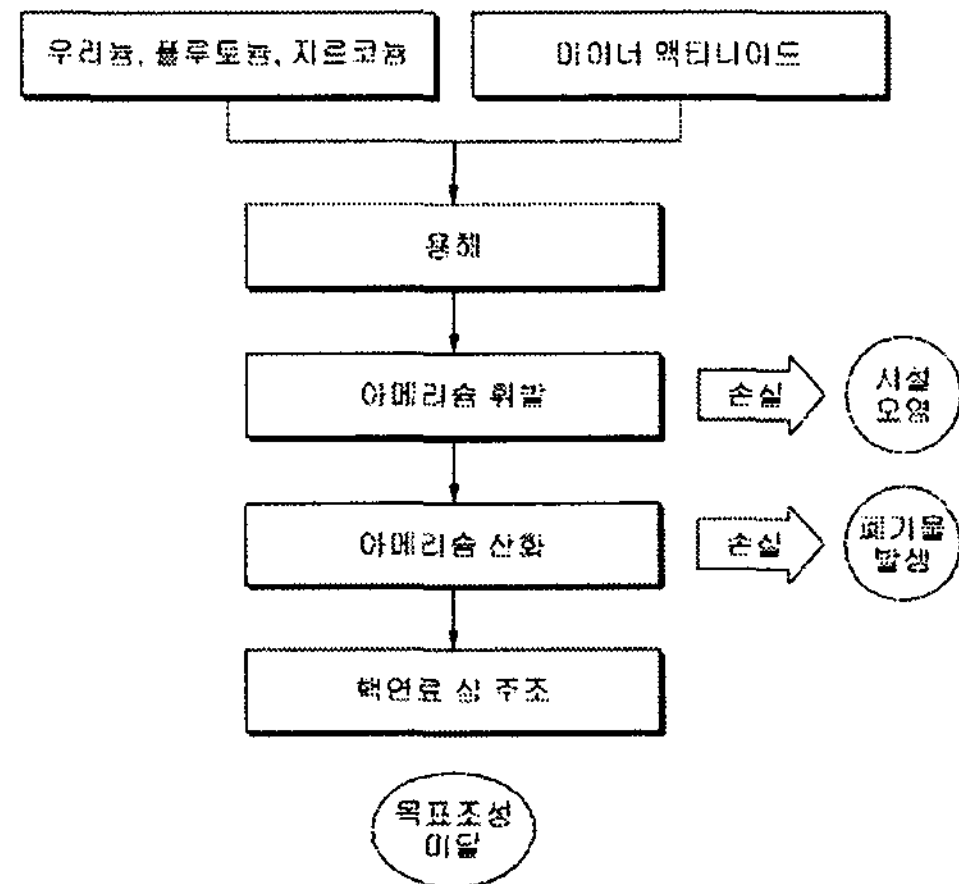


Fig. 1. TRU 함유 금속핵연료의 제조 시 휘발 및 산화에 따른 문제점

### 2. 분석 결과

식(1)로 표현되는 Clausius-Clapeyron 식을 이용하면 원소별 평형 증기압을 구할 수 있다.

$$d \ln P^0 = \frac{\Delta H_v}{RT^2} dT \quad (1)$$

계산의 단순화를 위해 증발 엔탈피가 온도의 함수가 아니라고 가정하면  $\Delta c_p$  자료가 없어도 식(2)와 같이 평형 증기압을 온도의 함수로 구할 수 있다.

$$\ln P^0 \approx -\frac{\Delta H_v}{RT} \left( \frac{1}{T} - \frac{1}{T_{boiling}} \right) \quad (2)$$

Fig. 2는 온도에 따른 우라늄, 아메리슘 및 희토류 원소들의 평형증기압을 비교하고 있다. 아메리슘은 액티나이드 원소중에서 가장 높은 평형 증기압을 가지고 있었으며 휘발성이 비슷한 원소로

는 Mn 등이 있다. 이렇게 휘발된 아메리슘은 제조 시설을 장수명 핵종으로 오염시키는 문제를 초래하게 된다. Fig. 3은 HSC5.1 열역학 코드로 계산한 TRU 함유 금속핵연료 성분의 기체 분율이 다. 통상적인 TRU 함유 금속핵연료의 용해 주조 온도인 1465도에서 시스템 압력에 따른 U, Pu, Zr, Np, Am의 성분비 변화를 계산한 결과, 압력이 낮아질수록 Am의 증발이 더욱 활성화되어 Am 성분의 비율이 증가하는 것을 알 수 있었다. 따라서 진공을 활용하는 기존의 감압 사출주조를 적용하기 위해서는 Am의 증발을 억제할 수 있도록 진공도 조건을 최적화해야 할 것으로 판단된다.

또한 아메리슘은 열역학적으로 산화성이 높아 제조 분위기에 미량 존재하는 산화성 기체 또는 수증기와 반응하여 산화물을 형성하고 슬래그로 용탕위에 떠올라 주조된 금속핵연료에 포함되지 않을 가능성이 있다. 산화반응의 자유에너지를 비교하는 Ellingham diagram을 통해 Am의 산화성을 비교해보면 Np이나 Cm은 산화성이 그리 높지 않은 반면 Am은 Nd, Ce, Y와 같은 희토류와 유사한 산화 경향을 나타내고 있다. EBR-II 금속핵연료 제조공정에서 Y 및 희토류 원소들은 용해 주조 후 금속핵연료에 포함되지 않고 skull에 95% 이상 포함되어 있는 것으로 분석된 바 있다. Am도 희토류와 동일한 산화거동을 나타낼 수 있기 때문에 TRU 함유 금속핵연료의 제조공정에서 Am의 산화 거동도 휘발 거동 못지 않게 중요하게 고려되어야 할 것으로 판단된다.

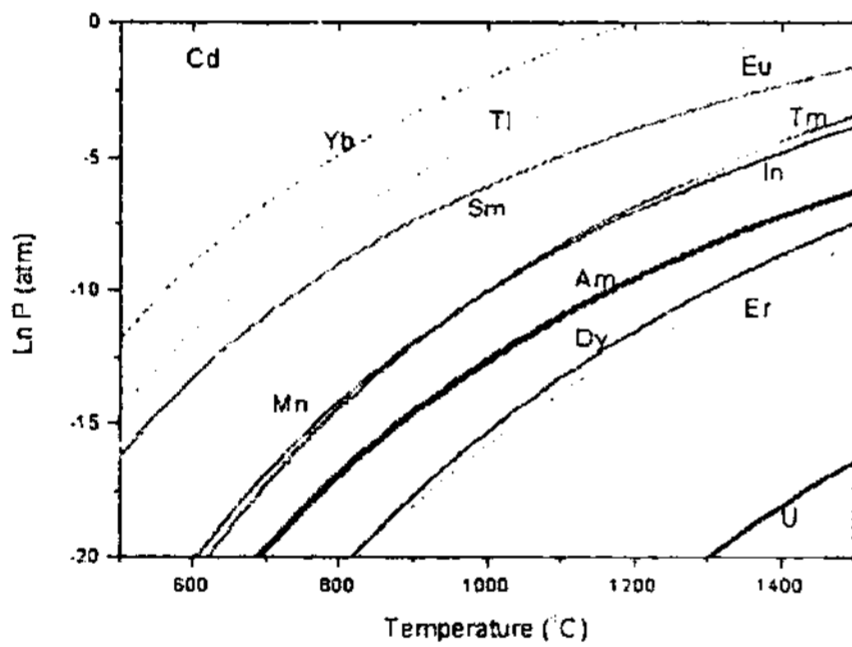


Fig. 2. Variation of vapor pressure with temperature.

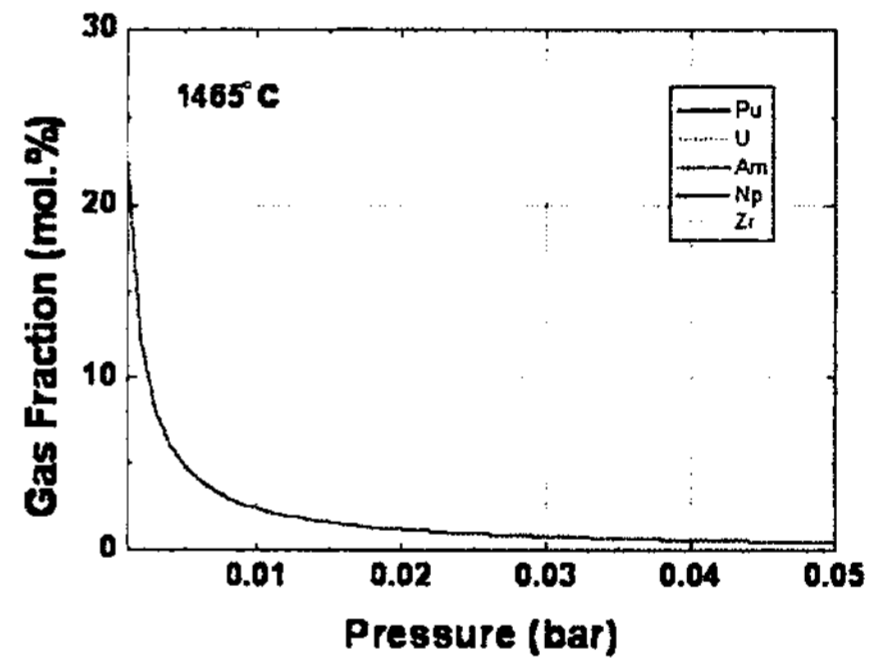


Fig. 3. Variation of gas fraction of constituent elements with pressure.

### 3. 제안 및 결론

TRU 함유 금속핵연료의 성공적인 제조를 위해서는 장수명 핵종인 Am의 휘발 및 산화를 억제하는 것이 중요하다. 이를 위해서는 중력 주조, 원심 주조, 연속 주조와 같은 새로운 주조 방법을 도입하거나 분말 야금법에 의한 금속 핵연료 소결체 제조 방법도 고려할 필요가 있다. 또한 용해될 금속 핵연료 성분에 아메리슘 보다 열역학적으로 산화성이 높은 희토류 원소를 첨가한다면 제조 분위기 기체에 미량 존재하는 산화성 기체 또는 수증기와 먼저 반응하여 산화되어 아메리슘의 산화를 최소화 할 수 있을 것으로 기대된다. 만일 먼저 산화된 희토류 원소들이 밀도가 낮은 산화물을 형성하여 용탕 위에 얇은 슬래그 막을 형성한다면 휘발성이 높은 아메리슘이 포화 증기압에 도달하는 것을 억제하여 아메리슘의 휘발을 감소시킬 수 있을 것으로 기대된다. 희토류 원소는 우라늄 내에서 고용한도가 매우 낮으므로 1 wt% 미만으로 미량 첨가하는 것이 바람직하며, 진공 또는 불활성 분위기에서 산소 분압의 조절을 통하여 첨가된 희토류의 산화막 형성을 조절할 수 있을 것이다.