

50 g 규모 염소화 공정을 통한 Zircaloy-4로부터 Zr 추출

전민구, 최용택, 이유리, 이창화, 강권호, 박근일
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 minku@kaeri.re.kr

1. 서론

최근 회자되고 있는 국내 사용후핵연료의 포화 문제의 해결책으로 제시되고 있는 pyro-process는 기존의 습식 재처리 공정에서 이용되는 화학적 반응 대신 전기화학적 반응을 통해 사용후핵연료로부터 U 및 TRU를 핵비확산성을 유지하면서 회수하는 방법이다 [1]. Pyro-process를 이용한 사용후핵연료의 처리 공정에서는 염폐기물, 휘발성 핵분열 생성물 등 다양한 방사성 폐기물이 발생하는데, 이 중 큰 비중을 차지하는 것이 금속 폐기물이다.

Pyro-process의 금속 폐기물은 주로 폐 피복관과 구조재로 나누어지며, 각각이 차지하는 비중이 핵연료 물질의 25 wt.%, 10 wt.% 정도로 전체 폐기물에서 차지하는 양이 매우 크다고 할 수 있다. 기존의 문헌에 따르면 폐 피복관의 경우 피복관 내벽으로 침투한 핵분열 생성물, 완벽히 제거되지 않은 채 피복관 외벽에 남아있는 잔류 사용후핵연료, 노심내 연소 중 생성된 방사화 핵종 등으로 인해 중저준위 폐기물로 분류가 어려운 상황이다. 따라서, pyro-process에서도 금속 폐기물이 전체 고준위 폐기물에서 차지하는 비중이 매우 클 것으로 예상되고 있다.

본 연구에서는 pyro-process 금속 폐기물 중 폐 피복관으로부터 Zr을 회수하는 방법 중 하나인 염소화 공정을 통한 고준위 폐기물 감량 가능성을 타진하였다. 염소화 공정은 폐 피복관 구성 물질의 약 98 wt.%를 차지하는 Zr을 선택적으로 Cl_2 기체와 반응시켜 휘발성이 좋은 ZrCl_4 형태로 변환하여 분리/회수하는 기술로 Zr의 높은 염화 반응성 및 ZrCl_4 의 낮은 비점을 이용한 방법이다. KAERI에서는 그 동안 HSC chemistry code를 이용한 열역학적 계산 및 기초 실험을 통한 자료 확보를 수행해 왔다 [2-5]. 기존 실험에서는 주로 10 g 규모로 부분적인 Zr 회수 실험만을 보고한 바 있으나, Zircaloy-4로부터 완전히 염소화를 진행한 경우의 연구에 대해서는 잘 알려져 있지 않다. 본 연구에서는 석영 반응기를 이용하여 50 g

규모의 Zircaloy-4 피복관의 염소화 공정을 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험 방법

본 연구에서는 기존에 보고된 바 있는 석영 반응기 시스템을 이용하여 반응 실험을 수행하였다 (Fig. 1) [5]. 염소화 반응은 70 cc/min Ar + 70 cc/min Cl_2 기체를 이용하여 380 °C에서 4 시간씩 2 번을 반복하여 수행하였다. 산화 탈피복에 대한 효과를 고려하기 위해 염소화 반응 전에 Zircaloy-4 피복관을 5 cm 길이로 절단한 뒤, 500 °C에서 10 시간 동안 공기 분위기하에서 산화시켰다. 회수된 ZrCl_4 는 ICP-AES 및 IC 분석을 통해 조성을 확인하였고, 반응 잔류물은 SEM-EDS를 이용해 구성 성분을 확인하였다.

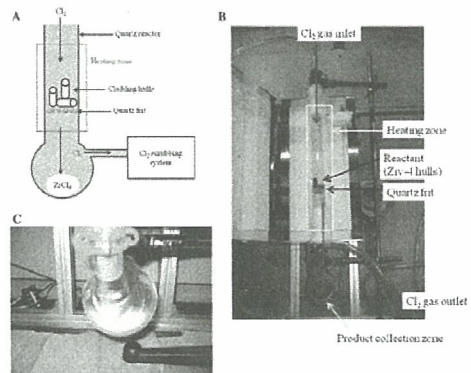


Fig. 1. Schematic diagram (A) and a picture of the quartz reactor set-up (B). Picture of the product collection zone during the chlorination reaction is also shown in (C) [5].

2.2 결과 및 논의

아래 Fig. 2에 반응전 피복관과 반응 결과물(회수된 ZrCl_4)의 사진을 나타내었다. Zircaloy-4 피복관의 무게는 51.7 g에서 4시간 반응 후 16.8 g으로 감소하였고, 이 때 회수된 반응 생성물은 83.5 g 이었다. 추가로 진행된 4시간 반응 후 얻

어진 반응 생성물은 38.2 g이었다. 각각의 생성물 내 Zr의 순도는 99.90, 99.59 wt.%로, 전체 회수물 내의 Zr 순도는 99.80 wt.%로 확인되었다. 조성 분석 결과를 토대로 계산된 Zr의 회수율은 산화로 인한 영향을 고려했을 때 97.48%로, 매우 높은 값을 확인하였다.

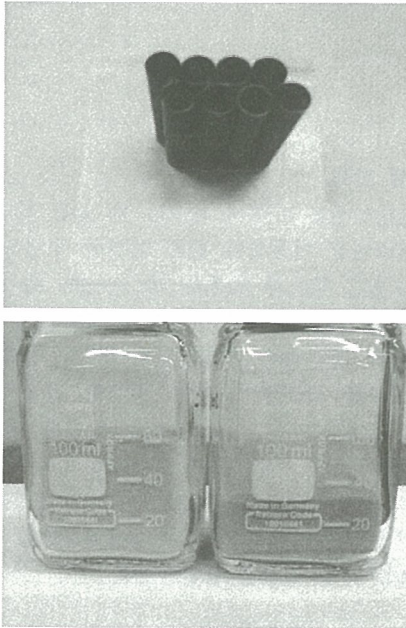


Fig. 2. Pictures of reactants (upper) and reaction products of the first (down, left) and second (down, right) reactions.

3. 결론

Zircaloy-4로부터 염소화 공정을 이용한 Zr회수 기술을 50 g/batch 규모에서 성공적으로 수행하였다. 회수된 Zr의 순도는 99.80 wt.%, Zr의 회수율은 97.48%로 확인되었다.

4. 참고문헌

- [1] 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, pp.317-328, 2011.
- [2] M. K. Jeon, J. W. Lee, K. H. Kang, G. I. Park, C. H. Lee, J. H. Yang, and C. M. Heo, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol.289, pp.417-422, 2011.

- [3] M. K. Jeon, K. H. Kang, G. I. Park, and C. H. Lee, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol.292, pp.285-291, 2012.
- [4] M. K. Jeon, K. H. Kang, C. M. Heo, J. H. Yang, C. H. Lee, and G. I. Park, Journal of Nuclear Materials, Vol. 424, pp.153-157, 2012.
- [5] M. K. Jeon, K. H. Kang, G. I. Park, and Y. S. Lee, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol.292, pp. 513-517, 2012.