

## 방사화된 Zircaloy-4 및 Zirlo 피복관의 염소화를 통한 제염 특성 분석

전민구, 박창제, 강권호, 김용호, 박근일

한국원자력연구원, 대전 유성구 대덕대로 989번길 111

[minku@kaeri.re.kr](mailto:minku@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

사용후핵연료 전처리 공정에서 발생하는 폐 피복관은 핵연료 물질 대비 약 25 wt.%를 차지하는 주요 폐기물 중 하나이다 [1, 2]. 특히, 폐 피복관은 중저준위 방사능 기준을 초과하는 것으로 알려져 있기 때문에 [3], 이의 처리 방안에 대한 논의가 활발하게 이루어지고 있다.

KAERI에서는 폐 피복관 처리 기술 후보 중 하나로 염소화 공정을 연구중에 있다. 염소화 공정은 피복관에 사용되는 Zr 합금인 Zircaloy-4 및 Zirlo의 98 wt.% 이상이 Zr으로 되어있다는 사실에 착안하여 염소 기체를 이용해 Zr을 휘발성이 높은  $ZrCl_4$ 로 변환하여 선택적으로 회수하는 기술이다. KAERI의 최근 연구내용에 따르면  $ZrCl_4$ 의 휘발 온도가 331 °C로 낮고 반응의 선택성이 좋아 Zr의 선택적회수가 가능할 것으로 기대되고 있다 [4 - 7]. 하지만 기존 연구들은 주로 피복관 구성물질, 잔류 사용후핵연료의 반응성 등에 초점이 맞추어져 있었다. 즉, 피복관 소재 자체의 방사화가 염소화 공정에 미치는 영향에 대한 논의가 이루어지지 않았다. 본 연구에서는 피복관 재료에 널리 이용되고 있는 Zircaloy-4 (Zry-4) 및 Zirlo의 방사화 및 염소화 공정을 통한 제염 효과에 대한 분석을 수행하였다.

### 2. 본론

#### 2.1 계산방법

본 연구에서는 기존에 알려진 Zry-4 및 Zirlo의 초기 조성을 이용하여 ORIGEN-S code를 통해 방사화 계산을 수행하였다 [8]. 방사화 계산은  $^{235}U$  농도 4.5 wt.%, 55 GWd/tU 연소도를 가정하였고, 원자로의 출력은 37.5 W/tU으로 설정하였다.

각 핵종의 염소화 반응 거동은 HSC chemistry code [9]를 이용해 계산하였다. 염소화 반응 생성물의 선정에 있어서 Tpp-diagrams 모듈을 이용하였고, 각 반응의 열역학적 특성은 Reaction equations 모듈을 이용하여 계산하였다.

#### 2.2 계산결과

ORIGEN-S 코드를 이용해 방사화 거동을 계산한 결과, Zry-4의 경우 방사능의 대부분이  $^{125}Sb$  (41.9%),  $^{60}Co$  (38.4%),  $^{125m}Te$  (10.2%),  $^{55}Fe$  (8.4%)에서 발생하는 반면, Zirlo의 경우에는  $^{93m}Nb$  (60.0%),  $^{125}Sb$  (22.2%),  $^{125m}Te$  (5.4%),  $^{63}Ni$  (5.2%),  $^{55}Fe$  (3.8%)에서 발생하는 것을 확인할 수 있었다. Zry-4와 Zirlo의 총 방사선량은 각각 1.17 및 1.38 Ci로 큰 차이가 나지 않는 것을 확인하였다 (1 kg fresh 피복관 기준). 반면 붕괴열의 경우 Zry-4가 8.58 mW, Zirlo의 경우 1.62 mW로 큰 차이가 나는 것을 확인할 수 있었는데, 이는 Zirlo에는 Zry-4에서 붕괴열의 98.7%를 차지하는  $^{60}Co$ 와  $^{125}Sb$ 의 양이 상대적으로 적기 때문인 것으로 확인되었다.

각 생성 핵종에 대한 염소화 반응거동 계산결과, 염소화 반응을 통해 염화물을 형성한 뒤 380 °C의 공정조건에서  $ZrCl_4$ 와 함께 휘발되는 물질은  $SnCl_4$ ,  $FeCl_3$ ,  $MoCl_5$ ,  $HfCl_4$ ,  $VCl_4$ ,  $TiCl_4$ ,  $SbCl_3$ ,  $PbCl_2$ ,  $SiCl_4$ ,  $NbCl_5$ ,  $ReCl_5$ ,  $WCl_6$ 로 확인되었다. 여기서 주목해야 할 점은 높은 붕괴열을 가지는 Co 및 높은 방사능을 가지는 Te가 Zr과 함께 분리되지 않을 것이라는 점이다. 이러한 계산을 통해 분리된 회수물의 염소화를 통한 방사능 및 붕괴열 감소를 그림 1에 나타내었다. Zry-4의 경우 방사능과 붕괴열 감소가 각각 49.0 및 81.8%로 높게 나타났다. 반면 Zirlo의 경우 11.6 및 13.0%로 비교적 낮은 제염 효과를 보였다. 이는 Zirlo의 경우  $^{93m}Nb$  및  $^{125}Sb$ 가  $ZrCl_4$ 와 함께 회수되기 때문인 것으로 확인되었다.

회수된  $ZrCl_4$ 의 방사능 및 붕괴열을 추가적으로 낮추기 위해서는 회수된  $ZrCl_4$ 의 추가적인 증류 공정이 필요할 것으로 보인다. 앞에서 언급되었던 핵종 중  $SbCl_3$ 의 비점은 220.4 °C로,  $SbCl_3$ 를 선택적으로 휘발시킬 경우  $ZrCl_4$ 의 방사능은 0.107 Ci로 감소하여 초기 값의 9.15%만 남게 된다.  $NbCl_5$ 의 경우 비점은 254 °C로, Zirlo 회수물에서 추가적인 증류 공정을 통해  $SbCl_3$ 와  $NbCl_5$ 를 제거할 경우 Zirlo에서 회수된  $ZrCl_4$ 의 방사능은

0.0573 Ci로, 초기 값의 4.15%로 낮아지는 것을 확인할 수 있었다.

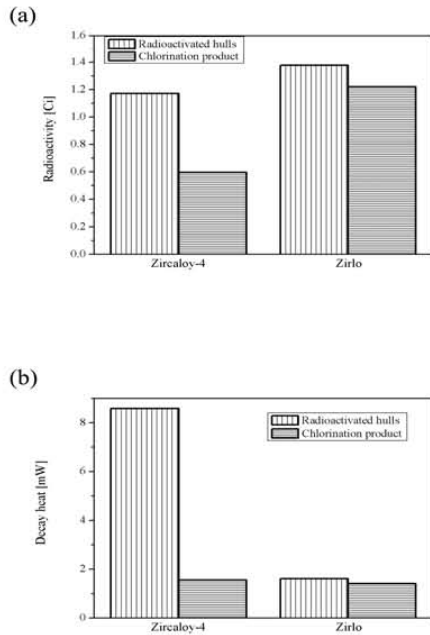


Fig 1. Zry-4 및 Zirlo 피복관의 염소화를 통해 회수한 Zr의 (a) 방사능 및 (b) 붕괴열 감소 계산 결과 (fresh 피복관 소재 1 kg 기준).

### 3. 결론

본 연구에서는 Zry-4 및 Zirlo의 방사화 계산을 수행하고, 각 핵종에 대한 염소화 반응성에 대한 검토를 수행하였다. 이를 통해 Zry-4 및 Zirlo의 주요 방사능 및 붕괴열 발생 핵종들을 분석하고 이 핵종들의 염소화 거동 분석을 통해 Zry-4의 경우 방사능과 붕괴열이 각각 49.0 및 81.8% 감소하고 Zirlo의 경우 11.6 및 13.0% 감소하는 것을 확인하였다. 또한 추가적인 증류 공정을 통해  $SbCl_3$  및  $NbCl_5$ 를 제거할 경우 Zry-4 및 Zirlo의 방사능이 각각 초기값의 9.15 및 4.15%로 감소하는 것을 확인하였다 [10].

### 4. 참고문헌

[1] K. -C. Song, H. Lee, J. -M. Hur, J. -G. Kim, D.-H. Ahn and Y.-Z. Cho, Nuclear Engineering and Technology, Vol. 42, No. 2, pp.131-144, 2010.

[2] 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, No. 4, pp.317-328, 2011.

[3] T. S. Rudisill, J. Nucl. Mater., Vol. 385, pp. 193-195, 2009.

[4] M. K. Jeon, J. W. Lee, K. H. Kang, G. I. Park, C. H. Lee, J. H. Yang and C. M. Heo, J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 289, pp.417-422, 2011.

[5] M. K. Jeon, K. H. Kang, G. I. Park and C. H. Lee, J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 292, pp.285-291, 2012.

[6] M. K. Jeon, K. H. Kang, G. I. Park and Y. S. Lee, J. Radioanal. Nucl. Chem., In press.

[7] M. K. Jeon, K. H. Kang, C. M. Heo, J. H. Yang, C. H. Lee, G. I. Park, J. Nucl. Mater., In press.

[8] C. J. Park, S. H. Na, J. H. Yang and K. H. Kang, KAERI/TR-4171/2010, 2010.

[9] Outokumpu Research Oy, HSC Chemistry Webpage. <http://www.outokumpu.com/hsc/>

[10] M. K. Jeon, C. J. Park, C. H. Lee, K. H. Kang and G. I. Park, J. Radioanal. Nucl. Chem., In press.