

Cs₂O와 Uranium Oxides 반응에 의한 2차상 Cs-U-O 생성

김종구, 박양순, 하영경, 송규석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

nigkim@kaer.re.kr

1. 서론

사용후핵연료의 가장자리에서 발견되는 2차상 Cs-U-O 화합물은 핵연료인 UO₂와 전혀 다른 특성을 가지므로 사용후핵연료 저장 관리상 source terms을 고려할 때 관심을 가져야 한다 [1]. Cs₂O와 uranium oxides 간의 반응을 통한 Cs-U-O 화합물의 생성을 열분석기, X-ray diffraction (XRD) 측정 및 화학분석을 통하여 조사하였다.

2. 본론

2.1 Cs₂O와 uranium oxides 혼합물의 가열

Cs₂O의 UO₂에 대한 반응성을 규명하기 위하여, Cs/U (atom 비)를 ~2가 되도록 Cs₂O와 UO₂의 무게를 취한 혼합시료에 대해 30 → 610℃ 온도 조건에서 가열시험을 하였다 (Fig. 1).

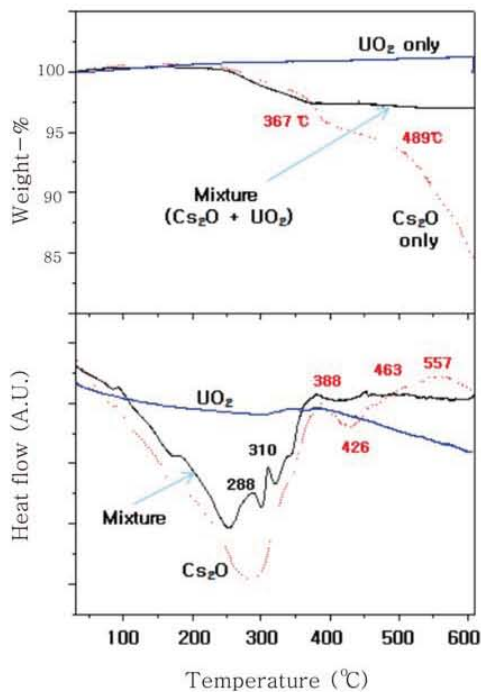


Fig. 1. TG-DSC curves during heating the mixture of UO₂ and Cs₂O.

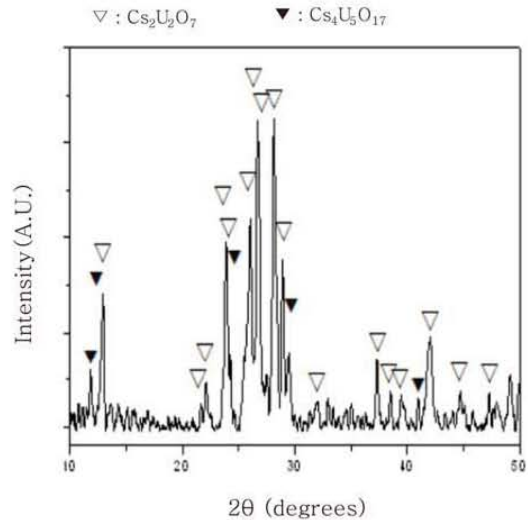


Fig. 2. XRD patterns of the reaction product after heating the mixture of UO₂ and Cs₂O.

2.2 Cs₂O와 uranium oxides 가열 생성물의 상 (phases) 측정

가열시험 후 시료에 대한 XRD 결정구조를 측정하였다 (Fig. 2).

2.3 Cs₂O와 uranium oxides 반응의 반응당량 (stoichiometry)

Cs₂O와 UO₂의 반응을 통한 U-Cs-O 생성반응에서 두 반응물 UO₂, Cs₂O 간의 반응당량을 규명하기 위하여 Cs/U (atom 비)가 각각 ~1, ~2 및 ~4가 되도록 Cs₂O와 UO₂의 무게를 취한 3개의 시료에 대하여 30 → 610℃ 온도조건에서 가열시험을 하고 생성물에 대한 화학분석을 수행하였다 (Table 1).

2.4 Cs₂O와 uranium oxides 반응 생성물의 온도에 따른 상변화

Cs₂O와 UO₂의 반응에서 온도조건에 따라 생성되는 phase pattern의 변화를 규명하기 위하여 반응물 Cs₂O와 UO₂의 양을 Cs/U (atom 비)를 ~2가 되도록 하고 다른 온도 조건인 181℃, 260℃,

Table 1. U-Cs-O formation depending on some Cs/U ratios.

Before heating		Dissolved parts in pH 2 solution for heated samples	
UO ₂ + Cs ₂ O (mg)	Cs/U (Atom ratio)	U _{dissolved} /U _{total}	Cs/U (atom ratio) in pH 2 solution
20.23 + 9.96	0.94	0.67	1.2
15.99 + 15.89	1.90	0.93	1.7
11.73 + 23.34	3.81	1	2.5

300℃, 400℃, 500℃, 610℃, 1000℃에서 반응시험을 한 후 시료에 대한 XRD를 측정하였다 (Fig. 3)

3. 결론

30 → 610℃까지의 Cs₂O와 UO₂ 혼합물의 열분석시험, 생성물의 XRD pattern을 통하여 이 온도 범위에서 Cs₂O와 UO₂ 간에 상호작용이 있음을 확인하였다. Cs₂O와 UO₂ 혼합물 중 Cs/U 비가 ~1, ~2, ~4 인 시료에 대한 30 → 610℃ 가열

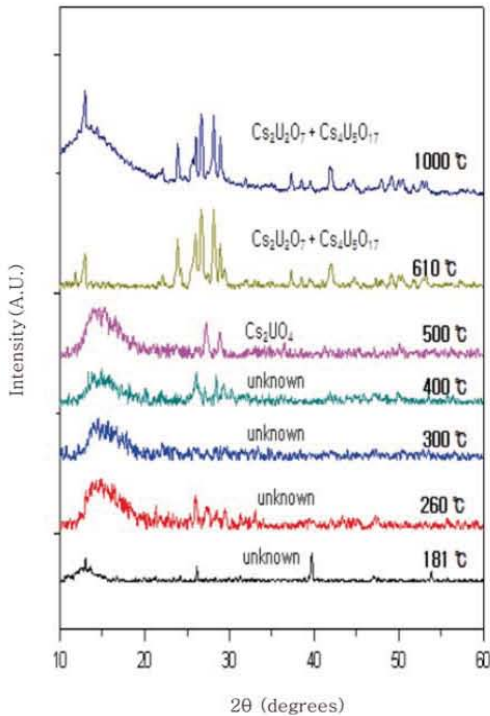


Fig. 3. XRD patterns of the reaction products between UO₂ and Cs₂O depending on temperatures.

시험 후 시료 중 U-Cs-O의 화학분석을 통하여, UO₂에 대한 Cs₂O의 반응의 결과 생성되는 U-Cs-O는 UCs₂O_x로 UO₂/Cs₂O 반응의 반응당량이 [UO₂]/[Cs₂O] ≃ 1임을 확인하였다.

- 온도조건에 따른 Cs₂O - UO₂ 가열 시험에서 181℃, 270℃, 400℃에서 가열한 시료들에서도 어떤 XRD pattern들을 보이지만 잘 알려진 U-Cs-O의 patterns 들과는 일치하지 않았고, Cs₂O의 녹는점(490℃)이상인 500℃시험에서 잘 알려진 UCs₂O₄의 patterns들을 확인하였다. 이 온도에서 UCs₂O₄는 UO₂ + Cs₂O + O₂ → UCs₂O₄에 따라 생성될 것이다. 그리고 30 → 610℃ 시험에서 확인하였듯이 이 UCs₂O₄는 500℃ 이상의 어느 온도에서 2UCs₂O₄ → U₂Cs₂O₇ + Cs₂O를 통하여 U₂Cs₂O₇로 변환될 것이다.

4. 감사의 글

이 연구는 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국과학재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다. (연구과제 관리코드: M20703010003-08M0301-00310)

5. 참고문헌

[1] S. Van den Berghe, A. Leenaers, B. Vos, L. Sannen, M. Verwerft, "Observation of a pellet-cladding bonding layer in high-power fuel", Seminar Proceedings, *Pellet-clad interaction in water reactor fuels*, Aix-en-Provence, France, March9-11, 2004, 265-272 (OECD 2005, NEA No. 6004).