

고온열처리 온도에 따른 연료파편 내재 세슘 휘발 특성

이재원*, 이도연, 이영순, 이광연, 양재환, 조용준

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*njwlee@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로공정의 전해환원용 원료물질은 전처리공정에서 제조 연구를 수행하고 있다. 원료물질의 형태는 사용후핵연료봉으로 부터 연료물질을 회수하는 방법에 따라서 달라지며, 회수방법으로 기계적탈피복 및 산화탈피복 방법이 있다. 연료물질은 기계적탈피복 방법에 의해서 연료파편(fuel fragment), 산화탈피복 또는 산화처리에 의해서는 U_3O_8 분말 형태로 회수된다. 기계적탈피복에 의해 회수된 연료파편은 고온열처리를 한 후에 열처리된 연료파편을 입도 선별을 하면 전해환원시에 메쉬형 바스켓을 사용할 수 있다. 산화처리에 의해 얻은 U_3O_8 분말은 성형 및 고온열처리를 통해 다공성 펠릿 형태로 얻어 지기 때문에 전해환원시에 메쉬형 (#325) 바스켓을 적용할 수 있게 된다. 고온열처리를 하여 Cs 및 I 핵종을 제거하면, 전해환원시에 반응성 높은 I로부터 Pt양극의 보호, 고방열핵종인 Cs이 거의 축적되지 않기 때문에 염교체 주기가 길어지며, 박막결정화법에 의해 염을 정제하여 재활용 할 수 있다는 장점이 있다. 고온열처리동안 연료파편이 분말화가 되지 않고 세슘 핵종의 방출분율이 높은 조건의 O/U비는 2.20이 된다[1]. 본 연구에서는 고연소도(61 GWd/tU)의 절단연료봉을 절개탈피복하여 회수된 연료파편을 사용하여 연료파편의 크기별로 O/U비 조절 효과 및 온도에 따른 세슘 핵종의 방출거동 및 입도변화를 분석하였다.

2. 실험

연료파편은 연소도 61 GWd/tU, 크기가 1-2 및 2-5 mm인 것을 사용하였다. O/U비가 2.20이 되는 평형상태 산소농도는 Lindemer와 Besmann [2]의 자료를 이용하여 계산하였다. 운반기체로 불활성의 알곤 가스를 사용하였으며, 열처리 조건은 Table 1과 같다. 산소와 알곤의 혼합기체의 공급은 등온구간에 서만 하였다. 이는 승온 및 냉각시 산소분압이 높아 서 펠릿이 과잉으로 산화(O/U비 \geq 2.25)되어 미립자가 발생되는 것을 방지하기 위한 것이다. Cs 핵종의 휘

발거동은 감마스펙트رو미터를 사용하여 분석하였다.

Table 1. Thermal pretreatment conditions

실험 번호	연료파편		열처리		유량 (L/min)
	크기 (mm)	무게 (g)	승온 열처리	등온 열처리	
FF-1	1-2	30	- 5 °C/min, Ar	- 1300 °C, 10 h, 260 ppmO ₂ /Ar	2.5
FF-2	2-5	30	- 1 st heating (1100 °C): 5 °C/min, Ar - 2 nd heating (1400 °C): 2 °C/min, Ar	- 1400 °C, 10 h, 824 ppmO ₂ /Ar	2.5
FF-3	2-5	30	- 1 st heating: 5 °C/min, Ar - 1 st holding: 900 °C, 7 h, Ar - 2 nd heating: 2 °C/min, Ar - 2 nd holding: 1250 °C, 3 h, Ar	- 1 st holding: 1500 °C, 4 h, Ar - 2 nd holding: 1500 °C, 6 h, 2928 ppmO ₂ /Ar	0.75

3. 결과 및 토의

열처리 온도 및 시간에 따른 Cs의 방출분율을 Fig. 1에 나타내었다. 연료파편의 크기 1-2 mm에서는 1300°C에서도 ¹³⁷Cs의 휘발제거율은 95.6%로 매우 높으나 (Fig. 1(a)), 연료파편의 크기가 2-5 mm인 경우에 1400°C로 온도 증가에도 불구하고 휘발제거율은 74.4%이며 (Fig. 1(b)), 열처리 중에 연료파편의 파쇄에 따른 Cs 계수치의 증가를 보정 하면 휘발제거율은 84%였다 (Fig. 2(b)). 연료파편의 크기 2-5 mm를 사용하여 온도를 1500°C로 증가시킨 경우 휘발제거율은 1400°C에서 열처리한 경우보다 낮은데 이는 열처리 중에 결정립의 성장에 의한 것으로 해석된다 (Fig. 1(c) 및 2(c)). Cs 방출속도를 해석하기 위해 교정된 방출분율 자료를 사용하여 등온 구간에서의 방출속도계수 (식 (1))를 계산하여 Table 2에 나타내었다. Cs 방출속도계수는 연료파편 크기 및 온도에 의존함을 알 수 있으며, O/U비가 2.0에서 2.20로 증가함에 따라 방출속도계수는 3.72배 증가함을 확인하였다 (Test No. FF-3).

$$F = (1 - g_0) \times (1 - e^{-kt}) + g_0 \quad (1)$$

Table 2. Release rate coefficient of ¹³⁷Cs

Test No.	F	k (1/min)	O/U ratio
FF-1	0.16*-0.916	7.59 x 10 ⁻³	≃ 2.20
FF-2	0.219*-0.84	3.67 x 10 ⁻³	≃ 2.20
FF-3	0.132*-0.227	4.46 x 10 ⁻⁴	≃ 2.0
	0.275*-0.504	1.66 x 10 ⁻³	≃ 2.20

*g₀ : 등온구간 개시 또는 일정 시간에서 방출분율

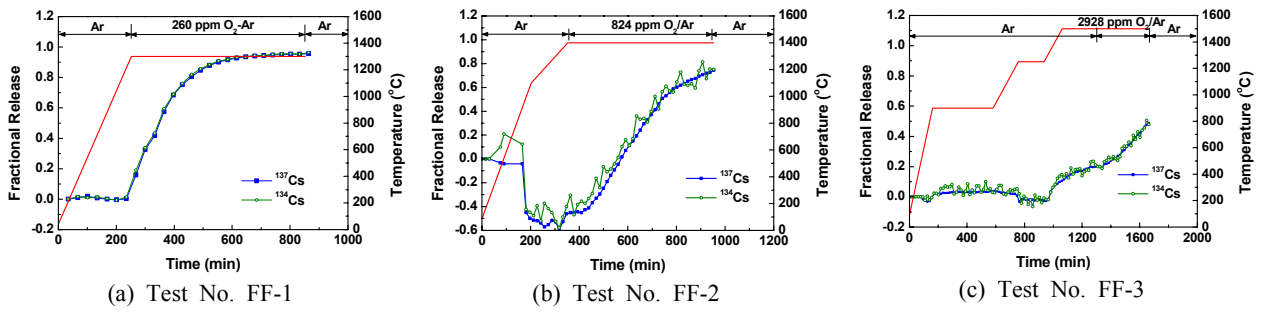


Fig. 1. Fractional release behavior of cesium from fuel fragments.

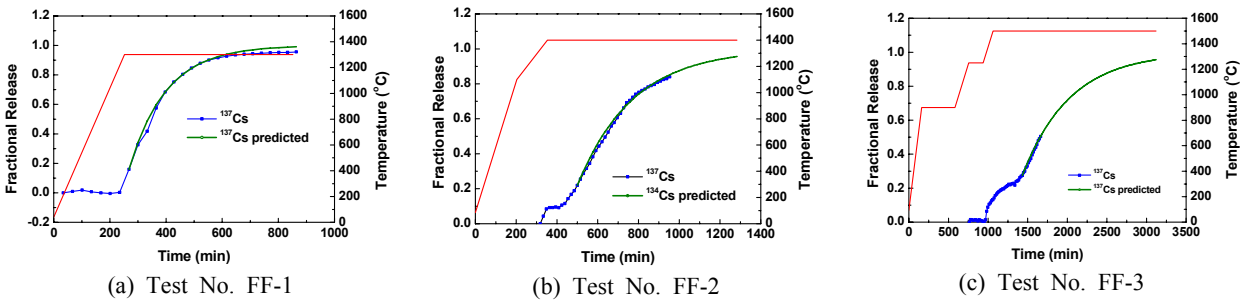


Fig. 2. Comparison between corrected and predicted fractional release behavior of ¹³⁷Cs.

열처리중 연료파편의 파쇄가 일어남을 Cs 계수치의 증가로부터 해석할 수 있었다 (Fig. 1). 파쇄는 484-1361°C의 승온 과정 중에 일어나며, 이는 핵분열에 의해 생성된 UO₂ 결정립의 기포에 존재하던 핵분열 기체(Kr, Xe)의 온도가 증가됨에 따라서 압력증가에 의해 파쇄된다 [3]. 핵연료 펠렛의 연소시에 온도가 450-1000°C 범위이며, 핵분열생성물 제거를 위한 연료파편의 열처리 온도가 연소시 온도보다 높기 때문에 기포내 핵분열 기체의 압력증가에 의해 연료 펠렛의 결정립이 파쇄되는 현상은 피할 수 없는 것으로 여겨진다. 연료파편의 파쇄는 육안관찰 및 입도분석을 통해 확인되었다. 시험전 후에 연료파편의 입도분석 결과를 Table 3에 나타내었다. 주 분포 크기인 2-5 mm 연료파편 내의 Cs를 95.6% 휘발제거율을 위해서는 열처리 온도를 1400°C로 하고 약 930 분 동안 열처리를 해야 되는 것으로 평가되었다 (Fig. 2(c)).

Table 3. Cumulative particle size distribution with thermal pretreatment conditions

Particle size (mm)	Particle size distribution (wt.%)			
	Recovered	FF-1	FF-2	FF-3
> 5	1.3	-	-	-
2-5	68.2	-	46.2	44.4
1-2	86.0	0.5	76.4	73.7
0.5-1	94.8	32.0	81.3	81.5
0.3-0.5	96.3	43.0	83.2	83.9
0.2-0.3	97.5	53.6	86.0	86.7
≤ 0.2	100.0	100.0	100.0	100.0

4. 결론

Cs의 제거를 위한 적합 열처리 조건은 1400°C이며, 열처리된 연료파편의 크기 0.2 mm 이상이 전해환원공정의 메쉬형 바스켓에서 수용되면 절개탈피복에 의해 회수된 연료파편을 기준으로 70%의 공급이 추정되나, 이 온도에서 대량으로 처리와 원활한 운전을 위해 내산화성이 있는 금속재질의 다공성 시료적재 tray가 요구된다. 열처리 온도를 1300°C 할 경우에 인코넬 시료적재 tray를 사용할 수 있으나 2 mm 이상의 연료파편을 사전에 파쇄한 후에 열처리를 해야 하기 때문에 메쉬형 바스켓에 공급할 수 있는 연료파편 양이 크게 감소될 것으로 추정된다.

5. 감사의 글

이 논문은 2012년도 교육과학기술부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(원자력 기술개발사업, No. 2012M2A8A5025696).

6. 참고문헌

- [1] K. Shiba, J. Nucl. Mater., 57, pp. 217-279 (1975).
- [2] T. B. Lindemer and T. M. Besmann, J. Nucl. Mater., 130, pp. 473-488 (1985).
- [3] J.-P. Hiernaut, T. Wiss, J.-Y. Colle, H. Thiele, C.T. Walker, W. Goll, R.J.M. Konings, J. Nucl. Mater., 377, pp. 313-324 (2008).