

## 분말처리에 따른 모의 핵연료의 특성변화 (Characteristics Variation of simulated spent fuel with Powder Treatment)

한국원자력연구소 강권호\*, 김영순, 배기광, 정인하, 박희성, 송기찬, 문제선, 이철용, 양명승

### 1. 서론

사용후핵연료의 안전한 관리, 재활용 및 처분을 위하여 사용후핵연료의 특성에 관한 연구는 원자로 내에서 핵연료의 조사거동에 관한 연구만큼이나 중요한 사항이다. 사용후핵연료를 직접 이용하여 이에 관한 특성을 연구하기에는 높은 방사선 준위 때문에 취급시 여러 가지 제약이 따르기 때문에 핵분열생성물을  $UO_2$ 에 첨가하여 제조한 모의 핵연료(SIMFUEL)를 이용하고 있다. 따라서 사용후 핵연료의 물성등을 예측하기 위해서는 모의 핵연료의 제조에 관한 연구가 우선되어야 한다. 모의 핵연료 제조에 분말처리는 분말의 유동성과 성형성 그리고 최종적으로 소결체의 건전성에 영향을 미치므로 이에 대한 연구가 중요하다. 본 논문에서는 분말처리가 모의 핵연료의 성형 및 소결거동에 미치는 영향에 관하여 기술하였다.

### 2. 실험

#### 2.1 재료

가압경수로에서 33 MWd/kgU 까지 연소된 사용후 핵연료의 핵분열생성물은 ORIGEN-2 코드로 계산하였으며, 이중 함량이 많은 12개 원소를 선택하여 천연 이산화우라늄( $UO_2$ )에 첨가하여 모의 핵연료를 제조하였다. 첨가된 핵분열 생성물의 양은 table 1에 나타내었다.

Table 1. Contents of fission products added in  $UO_2$

Elements	Cont.(wt%)	Forms	Elements	Cont.(wt%)	Forms
Zr	0.422	$ZrO_2$	Ce	0.278	$CeO_2$
Mo	0.392	$MoO_3$	Nd	0.708	$Nd_2O_3$
Ru	0.269	$RuO_2$	Sr	0.084	$SrO$
Pd	0.187	$PdO$	Rh	0.049	$Rh_2O_3$
Ba	0.218	$BaCO_3$	Te	0.058	$TeO_2$
La	0.143	$La_2O_3$	Y	0.052	$Y_2O_3$

#### 2.2 분말처리

첨가된 핵분열생성물이  $UO_2$ 와 고루 섞이게 하기 위하여 turbualr에서 약 2시간동안 혼합하였으며, 입도를 낮추기 위하여 attrition miller에서 건식 및 메틸알콜을 이용한 습식분쇄를 수행하였다. 또한 모의 DUPIC (Direct Use of PWR spent fuel In CANDU reactor) 핵연료를 제조시 이용되는 OREOX (Oxidation and Reduction of Oxide fuel)공정을 3회 수행하였다. 건식분쇄는 attrition miller에 약 400g의 분말을 장입하고, 150 rpm의 arm 회전속도로 약 15분간 분쇄하였으며 5회 반복하였다. 습식분쇄는 attrition miller를 이용하여 메틸알콜내에서 약 24시간 수행하였다. OREOX 처리로서 400℃의 공기 중에서 약 16시간 산화시켰으며, 600℃의 수소 중에서 약 8시간 환원시켰다.

#### 2.3 성형 및 소결

다이벽면과 성형체간의 마찰을 막기위해 Zn stearate를 벤젠에 녹여 벽면에 도포한 상태로

성형하였다. 1.3~1.65 ton/cm<sup>2</sup>의 압력으로 성형하였으며, 1800℃, H<sub>2</sub>(100%) 분위기에서 약 12 시간 소결하였다.

### 3. 결과 및 고찰

원료분말의 입도는 3.28 μm였으며 1회 건식분쇄후 1.68 μm에서 5회 분쇄후 0.5 μm까지 분쇄 횟수가 증가할수록 입도는 작아지는 것으로 나타났다. 습식 분쇄후 입도는 0.36 μm로 건식 분쇄에 비해 입도가 작게 나타났다. 또한 OREOX후 입도는 3.43 μm로 원료분말의 입도와 비슷하게 나타났다. 원료분말의 비표면적은 5.33 m<sup>2</sup>/g였으며 1회 건식분쇄후 5.51 m<sup>2</sup>/g에서 5회 분쇄후 6.06 m<sup>2</sup>/g까지 분쇄횟수가 증가할수록 증가하는 것으로 나타났다. OREOX 후 비표면적은 5.23 m<sup>2</sup>/g로 원료분말의 비표면적보다 적게 나타났다. 또한 원료분말의 Bulk density는 1.436 g/cm<sup>3</sup>이었으며 5회 분쇄후 2.236 g/cm<sup>3</sup>로 증가하는 것으로 나타났다. 1.3~1.65 ton/cm<sup>2</sup>의 범위에서는 분말처리에 관계없이 성형밀도 및 소결밀도 모두 성형압에 비례하여 증가하는 것으로 나타났다. 건식 분쇄된 분말의 소결체, 습식 분쇄된 분말의 소결체 및 OREOX 처리된 분말의 소결체의 소결 밀도는 각각 10.23~10.26, 10.42~10.48 및 10.37~10.40 g/cm<sup>3</sup>로 습식 분쇄된 분말의 소결 밀도가 가장 높게 나타났다. 건식 분쇄 및 습식 분쇄된 분말의 소결체에는 외부크랙이 존재하나 OREOX 처리된 소결체의 표면에는 육안으로 크랙이 확인되지 않았다. 분쇄처리후 형성된 크랙의 깊이는 약 1mm이하이며 길이는 약 5~10mm 정도였다. 이는 표면의 연삭으로 충분히 제거될 것으로 생각된다.

### 4. 결론

모의 핵연료 제조에 미치는 분말처리의 영향에 관한연구에서 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 분말의 입도 및 비표면적은 습식 분쇄처리후 가장 작게나타났다.
2. 성형압이 증가함에 따라 소결밀도 역시 증가하였으며, 습식 분쇄처리후 가장 높게 나타났다.
3. 건식 및 습식 분쇄 처리된 분말의 소결체에는 크랙이 형성되나 OREOX 처리된 분말의 소결체에는 크랙이 형성되지 않았다.
4. OREOX 처리된 분말의 소결체의 결정립 크기가 가장 크게 나타났다.

### 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.