

사용후핵연료 재활용을 위한 모의 핵연료 분말 제조 및 특성 평가

한국원자력연구소 이재원*, 김웅기, 박근일, 이정원

1. 서 론

경수로형 발전소에서 사용된 핵연료를 건식 공정만으로 가공하여 중수로형 발전소의 핵연료로 재활용하고자 하는 경.중수로 연계 핵연료(Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors : DUPIC) 연구가 수행되고 있다. 이러한 핵연료를 제조하기 위한 원료분말은 산화·환원열처리(oxidation and reduction of oxide fuels : OREOX) 공정으로 만들어지고 있다. 산화공정에 의해서 사용후핵연료의 주성분인 UO_2 가 산화되어 U_3O_8 , 환원공정에 의해서 U_3O_8 에서 UO_2 로 전환될 때 상변태에 의해서 산화공정에서는 부피팽창, 환원공정에서는 압축응력에 의해서 핵연료 소결체가 분말로 깨어지며 분말입자에 균열이 생긴다. OREOX 공정을 반복하면 분말의 입자크기가 감소되며, 비표면적이 증가되나 소결성은 저하되므로 고에너지 분쇄방식인 attrition milling에 의해 미분쇄하여 사용하고 있다. OREOX 처리분말은 반복횟수에 따른 다양한 입자크기, 비표면적 및 다른 입자형상을 보인다. 따라서 이들 OREOX 처리분말 특성이 후속 공정인 분쇄에 의해서 생성되는 분말특성에 미치는 영향을 분말특성 분석을 통해 평가하였으며, 또한 이들 분말들이 성형성 및 소결성에 미치는 영향을 조사하였다.

2. 실험

모의 사용후핵연료는 35,000MWD/MTU 연소도와 냉각시간이 15년인 경우의 사용후핵연료를 모사하여 ORIGEN-2 코드로 기체상을 제외한 핵분열 생성물의 양을 결정하고, 모의 핵분열 생성물을 산화물 상태로 UO_2 분말(ADU)에 첨가하여 일련의 핵연료 제조공정으로 제조하였으며, 소결밀도가 $10.23g/cm^3$, 결정립크기가 $7.1\mu m$ 이상인 소결체를 본 실험에 사용하였다. OREOX 처리실험은 4회까지 반복하였으며 OREOX 처리조건은 산화는 $450^\circ C$ 에서 공기로 3시간, 환원은 $700^\circ C$ 에서 Ar-4% H_2 가스로 5시간, 승온 및 감온시에는 Ar 가스로 하였으며 각 OREOX 처리 최종단계에서는 Ar-2% O_2 가스로 4시간동안 안정화 처리를 하였다. OREOX 처리분말은 attrition mill을 사용하여 150rpm으로 15-120분까지 분쇄하였다. 분쇄분말은 100-350 MPa의 압력으로 성형하여 원통형 전기로에 넣고 Ar-4% H_2 분위기 하에서 $3^\circ C/min$ 의 승온속도로 가열하여 최종 $1700^\circ C$ 에서 6시간동안 소결하였다. 분말특성은 입자크기, 비표면적 및 미세구조 분석에 의해 평가하였으며, 성형 및 소결밀도를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

OREOX 처리에 의해서 모의 핵연료의 결정립이 그대로 남아 있는 상태에서 입자가 분쇄되어 작은 조각으로 분리되는 형상을 보였다. OREOX 처리를 반복함에 따라서 결정립내에 생성되었던 큰 균열 감소하고 미세 균열이 많이 생성되었으며 스펀지형태의 분말이 되었다. Fig. 1은 OREOX 처리분말의 입자크기 및 비표면적을 나타낸 것으로 3회까지의 반복적인 처리에 의해서 입자크기는 선형적으로 감소하며 비표면적은 증가하였다. 3회 처리분말의 비표면적의 급격한 증가는 분말 입자내부에 미세 균열의 생성과 입자표면이 거칠어지기 때문이다. 4회 처리분말에서는 입자크기는 증가하고 비표면적은 다소 감소하였는데 이는 입자들의 부분적인 소결에 의한 것으로 생각된다. Fig. 2는 1회 및 3회 OREOX 처리분말의 분쇄

시간에 따른 입자크기 및 비표면적 변화를 나타낸 것으로 60분간 분쇄할 경우 OREOX 반복횟수에 상관없이 거의 동일한 입자크기를 갖는 submicron 크기의 미세한 분말을 얻을 수 있었다. 분쇄에 의해 분말입자들이 미세해지고 미소균열로 인해 비표면적은 거의 선형적으로 증가하였으나, 분말의 비표면적은 OREOX처리 반복횟수에 의해서 결정되었다. OREOX 분말은 분쇄시간이 길어짐에 따라서 응집체(agglomerate)를 형성하며 1회 OREOX 처리 분쇄분말은 느슨한 응집체, 3회 OREOX 처리 분쇄분말은 조밀한 응집체 형상을 보였다.

Fig. 3은 성형압력에 따른 모의 DUPIC 분말과 ADU 분말의 성형밀도를 측정된 결과로서 1회 OREOX 처리 분쇄분말의 성형밀도는 거의 선형적으로 증가하였다. 3회 OREOX 처리 분쇄분말은 성형밀도와 성형성에는 차이가 있지만 ADU 분말과 비슷한 형태의 성형거동을 나타내었다. 3회 OREOX 처리 분쇄분말의 경우 조밀한 응집체를 생성하고 높은 성형압력에서 성형밀도가 6.37g/cm³이상인 경우에는 즉 60분 및 120분 분쇄 분말의 소결체에는 결함이 생겼다(Fig. 4). 1회 OREOX 처리분말은 300 MPa까지 성형압력의 증가에 따라서 성형밀도의 증가와 함께 소결밀도도 증가하였다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.

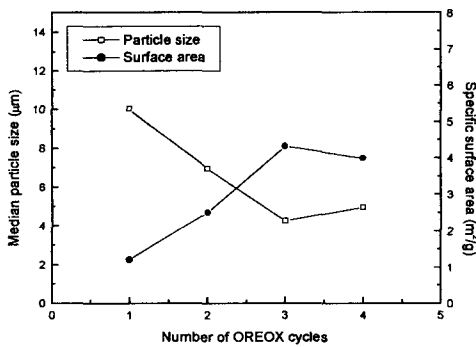


Fig. 1. Particle size and specific surface area of the cyclic OREOX-treated powders.

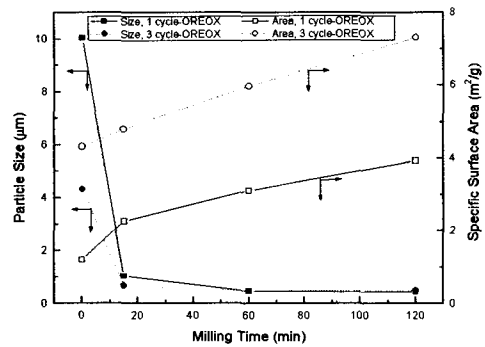


Fig. 2. Particle size and specific surface area of the milled powders.

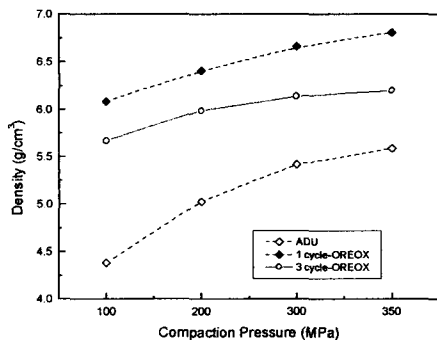


Fig. 3. The variation of green densities with compaction pressure.

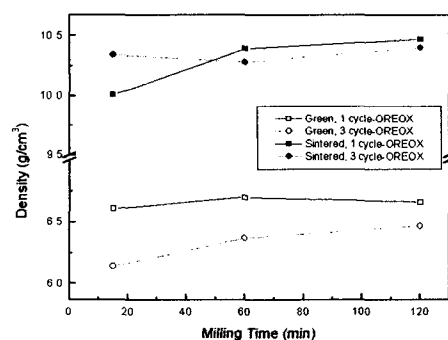


Fig. 4. The variation of green and sintered densities with milling time.