

모의사용후핵연료 분말을 이용한 재가공 핵연료 소결체 제조특성

Study on the fabrication of dry recycled nuclear fuel pellet by using Simfuel

한국원자력연구소 이정원*, 이재원, 김웅기, 박근일

1. 서론

경수로형 발전소에서 사용된 핵연료를 건식 공정만으로 처리하여 중수로형 발전소의 핵연료로 재사용하고자 하는 건식 재가공 핵연료 연구가 수행되고 있다. 이러한 핵연료를 제조하기 위한 원료분말은 산화·환원(oxidation and reduction of oxide fuels : OREOX) 공정으로 만들어지고 있다. 그러나 실제 사용후핵연료는 고방사성의 핵물질이라 직접 실험에 이용하는 데는 어려움이 많아 사용후핵연료를 모사한 모의사용후핵연료(Simfuel ; Simulated Fuel)를 이용해 실험하고 있다. 본 연구는 이러한 건식 재가공 핵연료 기술개발을 위해 모의사용후핵연료를 이용해 수행된 일련의 재가공 핵연료 소결체 제조실험 결과에 관한 것이다.

산화·환원 공정 동안 사용후핵연료의 주성분인 UO_2 가 산화되어 U_3O_8 , 다시 UO_2 로 환원될 때 상변태에 의해서 핵연료 소결체가 분말화 된다. 산화·환원 공정에서 얻어진 분말은 산화·환원 반복횟수에 따라 그 분말 특성이 달라지며, 또한 후속 공정인 분쇄에 의해서도 그 분말 특성이 달라지기 때문에 이들 분말들이 재가공 핵연료 소결체의 성형성 및 소결성에 미치는 영향을 조사하였다. 그리고 산화·환원 공정을 반복하여 분말을 제조하는 방법과 병행하여 1회 산화·환원 처리한 분말에 소결촉진제로 TiO_2 를 첨가한 분말을 이용하여 재가공 핵연료 소결체의 제조특성을 살펴보았다.

2. 실험방법

모의사용후핵연료는 가압경수로에서 35,000 MWD/MTU 연소도와 냉각시간이 15년인 경우의 사용후핵연료를 모사하여 ORIGEN-2 코드로 기체상을 제외한 핵분열생성물의 양을 결정하고, 모의핵분열생성물은 산화물 상태로 UO_2 분말(ADU, 평균입도 : $2.91 \mu m$)에 첨가하여 일련의 핵연료 제조공정인 분쇄, 혼합, 성형, 소결 단계를 거쳐 제조하였다. 산화·환원 처리실험은 4회까지 반복하였으며 산화는 $450^\circ C$ 에서 공기로 3시간, 환원은 $700^\circ C$ 에서 Ar-4% H_2 가스로 5시간 하였다. 산화·환원 처리분말은 attrition mill을 사용하여 150 rpm으로 15~120분까지 분쇄하였다. 분쇄분말은 100~350 MPa의 압력으로 성형하여 고온전기기로 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. TiO_2 첨가 혼합분말은 150~400 MPa의 압력으로 성형하여 성형밀도를 측정 후 고온전기기로 넣고 Ar-4% H_2 분위기하에서 $4^\circ C/min$ 의 승온속도로 가열하여 $1700\sim 1800^\circ C$ 에서 6시간 동안 소결하였다. 그리고 소결체에 대한 밀도와 미세조직을 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

산화·환원 처리를 반복함에 따라서 결정립내에 생성되었던 큰 균열은 감소하고 미세 균열이 많이 생성되었으며, 스펀지 형태의 분말이 되었다. 그림 1은 산화·환원 처리분말의 입자크기 및 비표면적을 나타낸 것으로 3회까지의 반복적인 처리에 의해서 입자크기는 선형적으로 감소하

며 비표면적은 증가하였다. 3회 처리분말에 있어 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. 그리고 1회 및 3회 산화·환원 처리분말의 분쇄시간에 따른 입자크기 및 비표면적 변화는 60분간 분쇄할 경우 산화·환원 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 산화·환원 처리 반복횟수에 의해서 결정되었다. 산화·환원 처리분말은 분쇄시간이 길어짐에 따라서 응집되는(agglomerate) 현상을 보이며 1회 산화·환원 처리 분쇄분말은 느슨한 응집체, 3회 산화·환원 처리 분쇄분말은 조밀한 응집체 형상을 보였다.

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

1회 산화·환원처리 분쇄분말에 소결촉진제 TiO₂를 첨가하여 Turbula[®] 혼합기에서 혼합하여 300 MPa에서 성형한 후 1750°C에서 소결한 결과를 그림 2에 나타내었다. 첨가제 함량의 증가에 따라 소결밀도는 증가하며, 0.2 wt.%를 첨가한 경우에는 소결밀도가 10.68 g/cm³까지 증가하였으며 TiO₂를 0.1 wt.%만 첨가하여도 3회 산화환원 반복처리 분쇄분말의 소결체보다 높은 소결밀도를 나타내었다.

4. 결론

- 산화·환원 처리분말의 특성은 3회까지의 반복적인 처리에 의해서 입자크기는 선형적으로 감소하며 비표면적은 증가하였다.
- 3회 산화·환원 처리 분쇄분말의 소결체 밀도는 10.37-10.40 g/cm³으로 거의 같은 값을 보이지만 1회 산화·환원 처리 분쇄분말의 경우에는 분쇄시간에 따라서 증가하였다.
- 소결촉진제 TiO₂의 첨가에 의해서 고밀화와 동시에 결정립이 크게 성장하였다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.

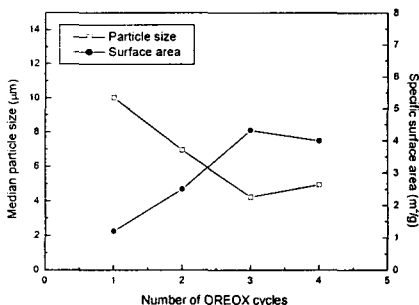


Fig. 1. Particle size and specific surface area of the cyclic OREOX-treated powders.

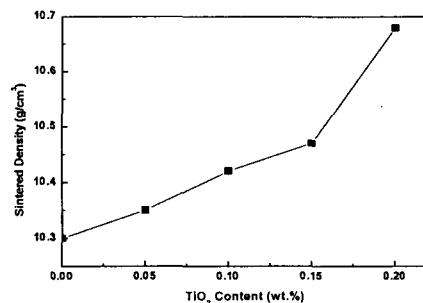


Fig. 2. Variation of sintered densities with increasing the contents of TiO₂