

SIMFUEL을 이용한 제조된 모의 건식재가공 핵연료 소결체 특성

이재원, 이정원, 김용기, 이수철, 박근일
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150
 njwlee@kaeri.re.kr

건식재가공 핵연료 제조공정에 있어 분말 및 소결체 특성화는 고방사성 사용후 핵연료의 취급에 의한 시험수행에 제한이 많아 실제 사용후 경수로 핵연료를 모사한 모의 사용후 핵연료(Simfuel)를 사용하여 수행하고 있다. 모의 사용후 핵연료는 농축우라늄대신에 천연우라늄, 핵분열 생성물 대신에 해당 산화물을 사용하여 제조한다(표 1). 최근에는 경수로 핵연료의 연소도를 높이고 있으며 연소도가 증가함에 따라서 핵분열생성물(불순물)의 양은 증가하게 되므로 이들 불순물은 분말 및 소결체 특성에 영향을 미칠 것으로 생각된다. 따라서 본 연구에서는 연소도 35,000 및 60,000 MWd/tU의 모의 사용후 핵연료 소결체를 제조하여(표 1) 산화·환원처리 및 밀링에 따른 분말특성을 조사하였으며, 소결체의 성능을 향상시키기 위해 첨가제를 이용하여 제조된 소결체의 특성을 분석하였다.

표 2는 3회 반복 산화·환원처리하여 15분간 Attrition 밀링을 한 분말의 특성을 나타낸 것으로 연소도가 높을수록 비표면적이 증가하는 것은 불순물중의 결정립계에 분포되어 있는 산화석출물(약 0.1 μm)에 의한 영향인 것으로 분말 입자의 형상 관찰로 판단할 수 있었다. 그림 1은 연소도 및 소결온도에 따른 소결체 밀도 및 결정립 크기를 나타낸 것이다. 소결온도 증가에 따라서 소결 밀도는 크게 증가되나 결정립 크기는 거의 변화가 없다. 연소도 35,000 MWd/tU의 이론밀도는 10.78 g/cm³, 연소도 60,000 MWd/tU의 이론밀도는 10.65 g/cm³으로 소결체 밀도는 모두 이론밀도의 95%이상으로 비표면적이 큰 연소도 60,000 MWd/tU 분말의 소결체가 이론밀도에 대한 상대밀도가 높았다. 반면에 연소도가 큰 경우에는 결정립 크기가 작는데 이는 금속석출물 및 산화석출물과 같은 UO₂에 불용성 입자가 UO₂ 고용체 입자의 성장을 억제하기 때문인 것으로 여겨진다.

UO₂ 소결체의 특성을 향상시키기 위해서 소결 촉진제로 TiO₂ 및 Nb₂O₅가 사용되고 있다. 이러한 소결촉진제를 모의 건식재가공 핵연료 분말에 첨가하여 1700°C에서 소결하였다. 연소도 35,000 MWd/tU의 모의 사용후 핵연료 소결체를 1회 산화·환원처리하여 15분간 4회 반복 Attrition 밀링한 분말(비표면적 3.75 m²/g)을 소결하여 얻은 소결체의 특성을 그림 2에 나타내었다. 산화·환원처리를 1회만 하였기 때문에 분말의 비표면적이 낮으나 첨가제 함량의 증가에 따라서 밀도는 크게 증가하였으며, 산화·환원처리를 3회 반복하여 1800°C에서 소결한 것(그림 1)보다 밀도가 높았다. 결정립 크기도 또한 0.1 wt.%만 첨가하여도 15 μm 이상의 큰 결정립을 얻을 수 있었다(그림 4). TiO₂가 결정립 성장에 보다 좋은 첨가제임을 알 수 있었다.

연소도 60,000 MWd/tU 분말의 소결체가 결정립이 작기 때문에 결정립을 증대 시키기 위해 TiO₂를 첨가하여 소결한 결과를 그림 3에 나타내었다. TiO₂ 첨가에 따라 소결밀도는 증가하며 첨가제 없이 1800°C에서 소결한 소결체보다 밀도를 높일 수 있었다. 결정립 크기는 첨가제 없는 경우 보다 증가하며 약 9 ~ 10 μm 정도였다. 결정립을 증대시키기 위해 액상소결이 가능한 첨가제인 Li₂O(용점 : 1570°C)를 첨가하여 소결한 결과를 그림 3에 나타내었다. 소결체 밀도는 1570°C 이상에서 Li₂O가 휘발하기 때문에 첨가량에 따라서 소결밀도는 다소 감소하나 모두 이론밀도의 95% 이상은 유지되었다. 결정립 크기는 첨가량에 따라서 증가하며 0.2 wt.% 첨가한 경우에 12 μm 까지 증가하였다(그림 4).

표 1. Simfuel 제조에 사용된 핵분열생성물 조성 및 대응 산화물

구분	우라늄 및 핵분열생성물	대응 산화물	원소 조성 (mol%)	
			35,000 MWD/MTU a)	60,000 MWD/MTU b)
기지	U	UO ₂	99.682	99.394
UO ₂ 기지 고융 산화물	Sr c)	SiO	0.205	0.422
	Y	Y ₂ O ₃	0.125	0.218
	Zr c)	ZrO ₂	0.981	1.628
	La	La ₂ O ₃	0.286	0.368
	Ce(Pu, Np) d)	CeO ₂	1.398	2.257
	Nd(Pt, Sm) d)	Nd ₂ O ₃	1.006	1.645
	Sum		3.942	6.538
금속첨출물	Mo	MoO ₃	0.640	1.437
	Fu(Tc) d)	Fu ₂ O ₃	0.723	1.325
	Pb	Pb ₂ O ₃	0.105	0.128
	Pd	PdO	0.314	0.584
	Sum		1.982	3.454
산화석출물	Ba	Ba ₂ CO ₃	0.323	0.458
금속/산화석출물	To	To ₂	0.089	0.159

a) 냉각시간 : 15년
 b) 냉각시간 : 영물
 c) Zr과 Sr은 Ba의 산화석출물로 존재
 d) 팔로늄의 원소는 괄호 앞의 원소로 대체하였음

표 2. 분말 특성

사용 분말특성	35,000 MWD/MTU		60,000 MWD/MTU	
	밀링전	밀링후	밀링전	밀링후
입자크기 (μm)	7.5	0.6	6.2	0.4
비표면적 (m ² /g)	4.86	5.38	5.57	6.21
겉보기밀도 (g/cm ³)	0.71	1.63	0.72	1.95
겉밀도 (g/cm ³)	1.87	3.05	1.83	3.12

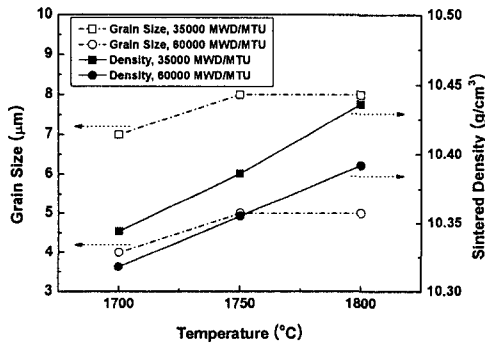


그림 1. 연소도에 따른 결정립 크기 및 밀도

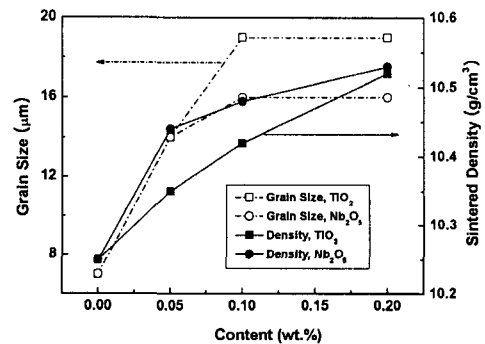


그림 2. 첨가제량에 따른 결정립 크기 및 밀도 (연소도 35,000 MWD/MTU)

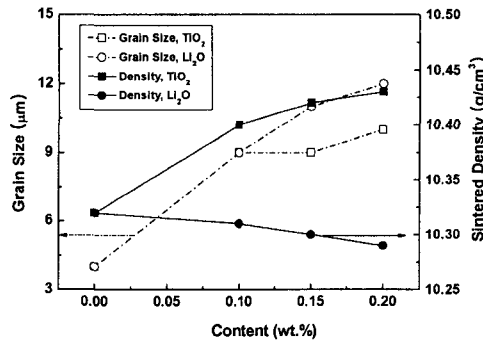


그림 3. 첨가제량에 따른 결정립 크기 및 밀도(연소도 60,000 MWD/MTU)

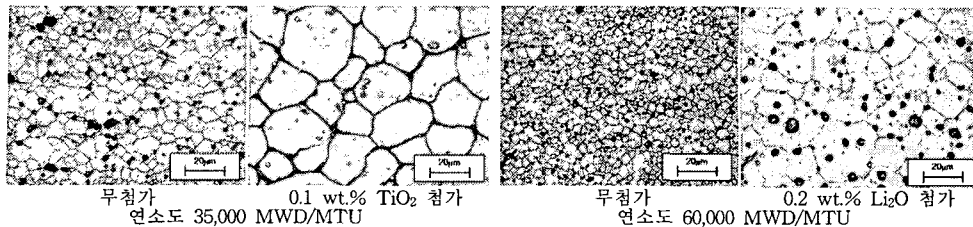


그림 4. 결정립 조직