

SIMFUEL을 이용한 불순물이 모의 건식재가공 핵연료 분말 및 소결체 특성에 미치는 영향 연구

이재원, 이정원, 박근일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150

njwlee@kaeri.re.kr

건식재가공 핵연료 소결체의 밀도 및 결정립 크기를 향상시키기 위한 제조특성 연구를 실제 사용후 경수로 핵연료를 모사한 모의 사용후핵연료(SIMFUEL)를 이용하여 수행하였다. 모의 사용후 핵연료는 농축우라늄대신에 천연우라늄, 핵분열생성물 대신에 해당 산화물을 사용하여 제조한다. 최근에는 핵연료의 경제성 및 단위 에너지출력당 사용후핵연료의 감용을 위해서 경수로 핵연료의 연소도를 높이고 있다. 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 SIMFUEL 소결체와 이의 불순물그룹별 SIMFUEL 소결체를 제조하여(표 1), 불순물 그룹 및 양이 산화·환원처리에 따른 분말특성 및 재가공 소결체의 결정립 크기에 미치는 영향을 조사하였다. 이를 기초로 하여 큰 결정립을 얻기 위한 기술 검토를 한 결과 TiO_2 와 같은 소결촉진제를 첨가하는 것이 가장 타당한 방법으로 분석되어 이에 대한 연구를 수행하였다.

그림 1은 산화·환원처리 단계별 분말특성으로 분말입자크기는 초기 소결체의 결정립 크기에 의존하며 환원처리(700°C)단계에서 소결에 의해 증가하나, 연소도 35,000 및 60,000 MWd/tU 분말의 비표면적은 1 및 2차 환원처리 단계에서도 증가하였다. 비표면적의 증가에 대한 불순물 그룹의 영향을 분석하기 위해 표 1에 나타난 연소도 60,000 MWd/tU에 나타난 조성을 기준으로 SS(고용원소)- UO_2 , OP(산화석출물)- UO_2 , MP(금속석출물)- UO_2 소결체를 각각 제조하였다. 1차 환원처리후 생성된 분말의 SEM관찰 결과를 연소도 35,000 및 60,000 MWd/tU 분말과 비교하여 그림 2에 나타내었다. 불순물 그룹별 분말 입자표면은 연소도 35,000 및 60,000 MWd/tU 분말과 같은 거친 표면이 관찰되지 않았다. 입자의 이러한 표면변화를 분석하기 위해서 1차 산화처리(500°C)후 생성된 분말의 XRD 분석 결과, 불순물 함량이 증가함에 따라서 U_4O_9 상의 양이 증가하였으며, 이는 2가 및 3가 양이온 고용원소의 함량증가에 의한 것으로 판단된다. 아울러 동일한 입자내 생성된 U_3O_8 (8.38g/cm³)상과 U_4O_9 11.20g/cm³)상이 환원처리단계에서 UO_2 (10.97 g/cm³)상으로 상변태에 의해 생기는 부피변화 차에 의해 입자표면이 거칠어져 비표면적이 증가하는 것으로 여겨진다.

연소도 35,000 및 60,000 MWd/tU 소결체를 산화·환원처리하여 생성된 분말을 attrition 밀링을 한 후에 300 MPa에서 성형하여 1700°C에서 소결한 소결체의 결정립 구조를 그림 3에 나타내었다. 불순물의 함량이 증가함에 따라 결정립크기는 7 μ m에서 4 μ m로 감소하였다. 불순물 그룹별 소결체의 결정립 크기는 SS- UO_2 , OP- UO_2 , MP- UO_2 의 순으로 감소하였다. 이는 석출물이 결정립 성장을 방해한다는 Zener 효과에 의해서 설명될 수 있었다[1]. 석출물의 양이 많고 입자크기가 작을수록 입계이동을 방해하는 힘이 커지는 것은 열역학적으로 볼 때 석출물에 의해 전체 입계면적이 줄어들어 전체 입계에너지가 낮아졌기 때문이다. 입계의 이동도를 향상시키기 위해 TiO_2 를 첨가하였으며, 연소도 35,000 MWd/tU의 경우에는 결정립 크기가 첨가제 함량이 0.2 wt%까지 증가함에 따라서 7 μ m에서 22 μ m까지 증가하였다. 연소도 60,000 MWd/tU의 경우에는 4 μ m에서 12 μ m까지 증가하였다. 첨가제가 없는 소결체의 경우에는 입계에서만 금속석출이 존재하나 TiO_2 가 첨가된 큰 결정립의 경우에는 결정립내에서도 금속석출물이 존재함을 알 수 있었다.

참고문헌 1. C.Zener, Am. Inst. Min. Metall. Engrs., 175 (1949) 15-51

