

휘발성 산화공정에 의한 우라늄산화물의 입도제어

이재원, 신진명, 박근일, 박장진, 이정원
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
njwlee@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로 전처리공정인 휘발성 산화공정에서는 파이로 공정의 부하 저감을 위해 회발성 및 준회발성 핵분열생성물의 휘발제거와 동시에 전해환원공정의 처리효율 증대를 위한 원료입자의 입도제어 관점에서 연구가 수행되고 있다. 전해환원공정의 처리효율을 증대시키기 위한 원료입자 조건으로는 전해질의 침투가 용이한 다공성 구조, 충전율을 높일 수 있는 형태, 그리고 mm 단위 정도의 크기가 요구되고 있다. 그리고 전해환원중에 결정입자들이 분리되어 전해질을 오염시키지 않는 구조, 환원체에 전해질이 부착되어 동반이송을 감소시키는 형태가 요구되고 있다. 따라서 본 연구에서는 SIMFUEL을 이용하여 고정형 및 회전형 휘발성 산화장치에 따른 입도제어 가능성을 실험을 통해 분석하였다.

2. 실험

분말입도제어 실험에는 연소도 60 GWd/tU의 SIMFUEL 소결체를 제조하여 사용하였다. 고정형 알루미나 관형로를 이용한 입도제어 실험에서는 500°C 및 700°C에서 3시간동안 2단계 산화처리를 한 후에 1200°C의 알곤분위기하에서 3시간동안 열처리를 하여 생성된 입자의 특성을 분석하였다. 회전형 휘발성 산화장치(그림 1)를 이용한 실험은 기계적 탈피복 및 산화 탈피복 공정을 고려하여 2차례 수행하였다. 기계적 탈피복 공정을 고려한 1차 시험에서는 SIMFUEL 소결체를 산화장치에 충전한 후에 회전속도를 3 rpm으로 하여 500°C 및 700°C에서 3시간동안 2단계 산화처리를 하고, 회전속도를 1 rpm으로 내린 다음에 1100°C의 알곤분위기에서 3시간동안 열처리를 하였다. 산화 탈피복 공정을 고려한 2차 시험에서는 우선 연소도 60 GWd/tU 소결체를 500°C에서 산화분말로 만든 후에 산화장치에 충전하였다. 그 다음에 산화장치 회전속도를 3 rpm으로 하여 700°C에서 3시간동안 산화처리를 하고, 연속하여 1100°C의 알곤분위기에서 3시간동안 열처리를 하여 생성된 입자의 특성분석을 하였다.

3. 결과 및 토의

고정형로에서 열처리에 의해 생성된 입자들은 표면이 거칠고 불규칙적인 형상을 보였으며(그림 2), 이는 충전밀도를 저하시키는 요인이 된다. 그림 3은 ASTM B214방법에 따라서 체가름을 하여 누적입도분포를 나타낸 것으로 전해환원용 바스켓으로 45 μm 체망을 사용할 경우에 44%는 전해환원공정에 이용될 수 없다. 1 mm이상의 입자는 27%로 매우 낮았다.

회전형로에서는 그레놀 형태의 입자가 얻어지며, 1차 및 2차시험에서 생성된 입자의 최대직경(diameter of outer embracing circle)은 각각 9 mm 및 22 mm였다(그림 4). 그레놀의 형상은 주로 타원형의 계란모양으로 회전속도가 증가함에 따라서 구형도가 낮아지는데 이는 U_3O_8 분말의 유동성을 높이기 위해 산화장치 내벽에 축방향으로 설치된 리프팅 플레이트와의 충돌에 의한 것으로 여겨진다. 2차 시험에서 얻은 U_3O_8 그레놀 입자를 고정형로에서 4% H_2 -Ar분위기에서 환원처리를 하여 UO_2 그레놀 입자를 제조하였다. UO_2 및 2차 시험에서 얻은 U_3O_8 그레놀 입자를 절단하여 SEM 관찰결과에 의하면 큰 기공(void) 및 균열이 없었으며(그림 5), 다공성 구조를 가졌으나 소결에 의해 결정입자들이 연속적으로 결합하여 잘 성장되었음을 알 수 있었다(그림 6). 벌크밀도 및 겉보기 기공율을 수침법(ASTM C830)으로 측정한 결과에 의하면 UO_2 그레놀 입자의 경우에는 2.69 g/cm^3 및 65%였으며, U_3O_8 그레놀 입자는 3.10 g/cm^3 및 69%였다. 위와 같은 실험조건에서 생성되는 그레놀 입자는 다공성이 매우 높음을 알 수 있었다.

사 사

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

