

Nd 함량에 따른 (U,Nd)O₂ 소결특성 변화

나상호, 주윤정, 강권호, 박창제
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 shna@kaeri.re.kr

1. 서론

현재 세계 원자력발전의 주종 연료로 사용되고 있는 이산화우라늄(UO₂)은 원자로에 장전되어 일정 기간 연소된 후 방출되며, 이 방출된 핵연료를 사용후핵연료라 한다. 사용후핵연료에는 핵분열생성물을 포함한 다양한 방사성물질이 함유되어 있으며, 연소도에 따라 그 함량은 달라진다. 우라늄 자원의 고갈 우려와 사용후핵연료의 보관·저장 등의 경제성 그리고 사용후핵연료의 처리를 통해 미연소된 우라늄 자원 및 연소시에 생성된 새로운 연료를 이용할 수 있는 기술의 발달로 인하여 사용후핵연료의 재활용에 대한 관심이 집중되고 있다. 사용후핵연료는 습·건식 재처리를 통해 혼합산화물(MOX) 또는 금속우라늄의 형태로 재활용되고 있다. 특히 경수로에서 연소된 사용후핵연료에는 미연소된 핵분열물질의 함량이 천연우라늄의 것보다 높아, 연료의 단순 재가공을 통해 중수로 연료로 바로 사용될 수 있는 DUPIC 핵연료 제조기술의 발달로 사용후핵연료에 대한 재활용기술은 광범위하게 펼쳐지고 있다. 방사성물질의 사용후핵연료에 대한 접근성이 용이하지 않아 대부분의 재활용기술은 사용후핵연료의 조성과의 유사한 모의물질(simfuel ; simulated fuel)을 사용하여 이루어지고 있다.

여기에서는 UO₂와 고체상의 고용체를 형성하는 핵분열생성물에서 원자가가 3가인 Nd₂O₃ 모의물질을 대표물질로 이용하여 연소도, 즉 첨가함량에 따른 소결특성을 조사하였다.

2. 실험 및 결과

UO₂-Nd₂O₃ 상태도에서 Nd₂O₃는 64 mol%까지 형석형의 고용체를 형성한다. 실험에서 Nd₂O₃의 첨가함량(wt%)은 3종류-1.63(2.59 mol%), 3.25(5.12 mol%) & 6.51(10.05 mol%)-이며, 총량은 50g으로 하였다. 이 함량은 각각의 연소도 3at%, 6at% 그리고 12at%에서 고용체를 형성하는 핵분열생성물의 총량이다. 이들의 기호는 각각 Nd-1, Nd-2 그리고 Nd-4로 나타내었다. (U,Nd)O₂ 소결체의 제조공정은 기존의 UO₂ 소결체 제조공정과 동일하게 분말처리(혼합, 조립 및 사분)-성형-소결공정으로 이루어진다. 다만 2 종류의 분말을 균질하고 균일한 혼합물을 만들기 위하여 혼합한 후 다이아믹 밀을 이용하여 밀링처리를 하였다. 밀링시간(hr)은 첨가량이 1.63wt%인 경우에는 4 조건(0.5, 1, 2 & 4), 첨가량이 3.25 및 6.51wt%인 경우에는 5조건(0.5, 1, 2, 4 & 8)으로 하였다. 이는 첨가량이 많을수록 균질화를 위해서 밀링시간의 증가가 필요할 것으로 판단하였기 때문이다. 성형은 1축 프레스를 사용하였으며, 성형압력(MPa)은 3 조건-150, 300 & 450-, 그리고 성형밀도는 기하학적 방법으로 측정하였다. 시료 당 무게는 5.0±0.1(g)으로 하였다. 각 조건당 성형체는 3개씩 제조하였다. 제조한 성형체의 소결은 1750 °C, 12시간 수소분위기하에서 하였으며, 소결밀도는 수침법(immersion method)으로 측정하였다. 그리고 결정립 크기는 결정립 크기는 시료를 반으로 잘라 연삭 및 연마한 후 thermal etching(1200 °C, 2시간)시킨 후 나타난 결정립을 광학현미경을 이용하여 6곳을 선정한 후, 선형교차(linear intercept)법으로 결정립이 50 개 지나는 거리로 측정하여 평균한 값이다.

그림 1에 원자가가 3가인 Nd의 함량(Nd-1, Nd-2 그리고 Nd-4) 및 다이아믹 밀링 시간에 따른 (U, Nd)O₂의 성형압력별 성형밀도 및 소결밀도를 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 함량에 관계없이 성형압력이 증가하면 성형밀도는 증가하는 경향을 보여준다. 또한 밀링시간이 증가하면 성형밀도는 증가하나 4시간 이상의 밀링시간에서는 거의 포화되는 경향을 보여준다. 반면에 소결밀도는 밀링시간이 증가하면 Nd-1 및 Nd-2의 경우 소결밀도는 감소하다가 포화되는 경향을 보여준다. 그러나 Nd-4의 경우에는 밀링시간이 증가하면 소결밀도는 증가하는 경향을 보여준다. 즉 첨가량에 따라 밀링시간을 조정해야 한다. 일반적으로 UO₂ 분말을 밀링하면 밀링시간에 따라 분말의 O/U비는 증가하며, 이에 따라 소결밀도는 감소한다. Nd는 3가이므로 4가의 UO₂와 고용체를 형성하려면 과잉의 산소가 요구된다. 따라서 Nd₂O₃의 첨가량에 따라 UO₂ 분말의 O/U비가 적절할 경우 소결밀도는 증가할 것으로 사료된다.

그림 2에 소결밀도가 비슷한 시료의 결정립 크기를 나타내었다. 즉 Nd-1의 경우, 밀링시간은 1시간, 성형압력은 300 MPa, 소결밀도는 94.5%T.D., Nd-2의 경우, 밀링시간은 2시간, 성형압력은 450 MPa, 소

결밀도는 94.8 %T.D., 그리고 Nd-4의 경우, 밀링시간은 2시간, 성형압력은 300 MPa, 소결밀도는 95.0 %T.D.이다. 그림에서 보는 바와 같이, 소결밀도는 대략 95 %T.D.로 비슷하지만 Nd의 함량에 따라 결정립 크기는 증가하는 경향을 보여준다. 다만 Nd-1과 Nd-2의 경우에는 결정립 크기가 비슷하다. 이는 밀링시간에 따라 증대된 과잉의 산소를 Nd-2가 충분히 수용하지 못하였기 때문에 나타난 것으로 사료된다.

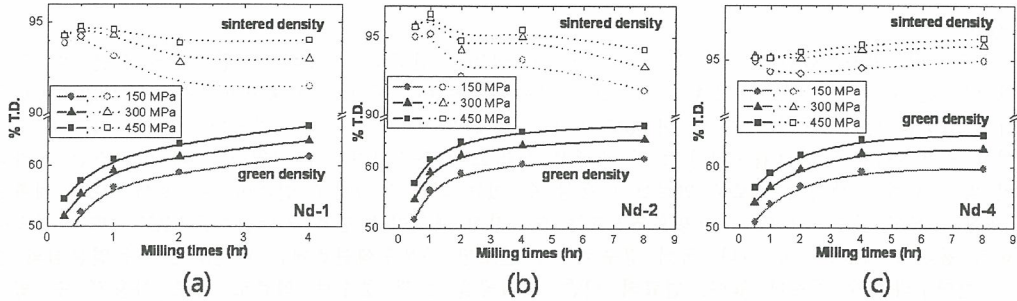


그림 1. Nd₂O₃의 함량 및 밀링시간에 따른 성형압력 별 성형밀도 및 소결밀도

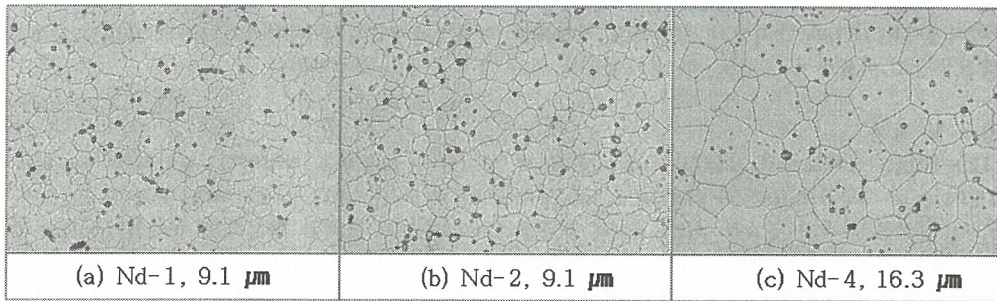


그림 2. Nd₂O₃의 함량에 따른 (U,Nd)O₂ 소결체의 결정립 크기

3. 결론

Nd₂O₃ 함량 및 밀링시간에 따른 (U, Nd)O₂의 소결밀도 및 결정립 크기를 조사하여 다음과 같은 결과를 구하였다.

- 밀링시간이 증가하면 Nd-1 및 Nd-2의 경우 소결밀도는 감소하다가 포화되는 반면에 Nd-4의 경우에는 소결밀도는 지속적으로 증가하는 경향을 보여준다.
- Nd의 함량에 따른 결정립 크기는 Nd의 함량이 적어도 Nd-2 이상이 되어야 증가하는 경향을 보여준다.

사 사

본 연구는 교육과학기술부의 원자력증장기과제의 일환으로 수행되었습니다.