

SIMFUEL 이용 고온 산화열처리 분말의 소결 특성

이재원, 김청한, 박장진, 박근일, 이정원
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 niwlee@kaeri.re.kr

1. 서론

고온 산화 공정법은 $UO_{2.00}$ 이상에서 금속상태로 존재하는 Cs과 같은 저융점의 핵분열생성물 원소와 Ru, Tc와 같은 고융점의 핵분열생성물을 산화에 의해서 휘발성 산화물로 전환시켜 제어하는 방법이다. 특히 캐나다 AECL에서는 1100~1600°C의 산화 조건에서 Ru와 같은 고융점의 금속석출물 형태로 존재하는 핵분열생성물을 제어함과 동시에 UO_2 에 고용되어 있는 희토류계 핵분열생성물의 제어 가능성을 제시하였다[1]. 본 연구에서는 고온 산화에 의해 상분리되는 희토류 원소(RE)를 기계적으로 분리하지 않고 상분리 분말의 소결특성을 SIMFUEL을 이용하여 조사하였다.

2. 실험

2.1 SIMFUEL 제조

순수한 UO_2 , 연소도 30 GWd/tU 및 60 GWd/tU 상당하는 SIMFUEL을 제조하였다. 연소도 30 및 60 GWd/tU SIMFUEL의 RE/(U+RE) 비율은 각각 1.463 및 2.849 wt.%이다.

2.2 모의 DUPIC 소결체 제조 공정

분말 제조공정은 Fig. 1과 같이 2개의 공정으로 하였다. 고온 산화처리를 제외하고 DUPIC 공정과 동일하게 3회 산화·처리를 하여 분말을 제조하였다. AP공정에서는 산화분말을 볼밀링하는 단계를 추가하였다. Attrition 밀링은 1회 및 3회 반복하였으며, 윤활제로는 Zn-stearate를 사용하여 밀링분말과 혼합하여 300 MPa의 압력으로 성형체를 제조하였다. 소결체는 4% H_2 -Ar가스를 사용하여 800°C에서 1시간동안 탈락스 후에 1700°C에서 6시간동안 소결하여 제조하였다. 분말제조 공정단계별로 생성된 분말의 입도는 Laser Particle Size Analyzer(Malvern) 이용하여 측정하였으며, 비표면적은 BET법을 이용하여 측정하였다. 소결체 밀도는 수침법으로 측정

하였다.

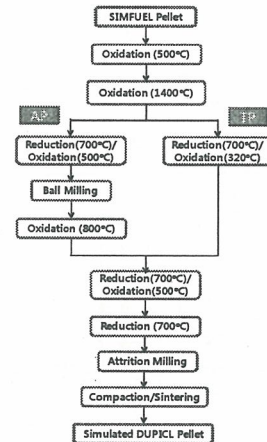


Fig. 1. Simulated DUPIC fuel fabrication process flow sheet

3. 결과 및 토의

3.1 분말특성

분말의 평균입도를 측정된 결과를 Fig. 2에 나타내었다. AP공정에서의 2차 산화분말의 평균입도는 약 5 μm 인데 이는 500°C에서의 산화, Ball 밀링, 그리고 800°C에서의 산화 후에 측정된 것으로 Ball 밀링에 의해서 입도가 크게 감소한 것으로 여겨진다. 3차 산화처리에 의해서도 입도는 감소하며, RE/(U+RE)=2.849를 제외하고 3차 환원처리 시에는 입도가 증가하였다. TP공정에서는 3차 산화처리시까지 입도는 감소하며, 3차 환원처리시에는 AP공정과 동일하게 RE/(U+RE)=2.849를 제외하고 평균입도는 모두 증가하였다. 공정과 상관없이 Attrition 밀링에 의해서 분말은 1 μm 이하의 미세한 분말이 됨을 알 수 있었다.

분말의 비표면적을 측정된 결과를 Fig. 3에 나타내었다. AP공정에 의해서 얻은 분말의 비표면적이 TP공정 분말보다 높음을 알 수 있었다. 3차 산화처리시까지는 3종류 분말의 비표면적은 모두

증가하며, 환원처리시에는 $RE/(U+RE)=0$ 을 제외하고 모두 증가하였다. Attrition 밀링에 의해서 분말의 비표면적은 급격히 증가함을 알 수 있었다. AP공정에 의해서 제조된 분말의 소결성이 높음을 알 수 있었다.

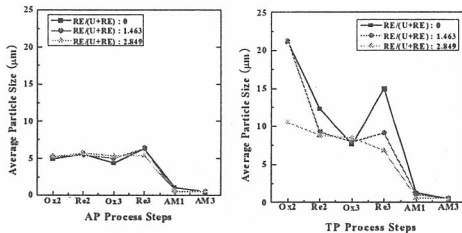


Fig. 2. Average particle size

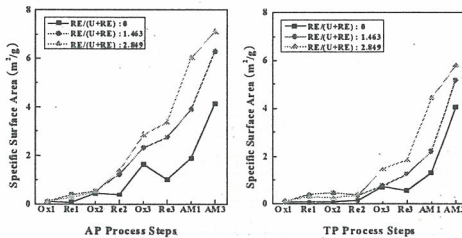


Fig. 3. Specific surface area

3.2 소결특성

성형체 및 소결체는 모두 균열 및 파쇄 없이 건전한 형상을 유지하였다. 소결밀도를 측정된 결과를 이론밀도의 백분율로 Fig. 4에 나타내었다. 소결성은 AP 공정에서 얻은 분말이 보다 좋음을 알 수 있었다. Attrition 밀링을 3회(AM3) 하였을 경우에 AP공정 및 TP공정에 의해서 생성된 분말의 소결체는 모두 이론밀도의 95%이상을 만족하였다. 따라서 $RE/(U+RE)$ 함량은 소결밀도에 영향을 미치지 않은 것으로 여겨진다. 고온 산화 상분리 분말도 환원·산화처리 및 밀링에 의해서 소결성이 좋은 분말이 얻어짐을 알 수 있었다.

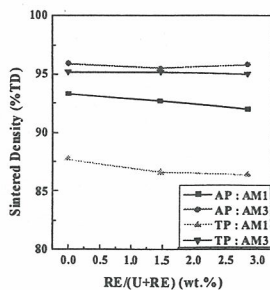


Fig. 4. Sintered density

4. 결론

고온 산화 상분리 분말도 환원·산화처리 및 밀링에 의해서 소결성이 좋은 분말로 전환됨을 알 수 있었다.

5. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.(연구과제 고유번호: 2009-0062282)

6. 참고문헌

[1] Z. Liu, D.D. Semeniuk, R.F. O'Connor and T. Kunkel, R.S. Dickson, "Report in the HOX2 Experiment : Fission-Product Release and Trapping During the OREOX and Sintering Processes", DUPIC-AE-022, AECL, 1998