

## 회전형 휘발성 산화장치이용 그래뉼형 원료입자 제조 실험

이재원, 윤여완, 신진명, 이정원, 박장진, 박근일

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

[njwlee@kaeri.re.kr](mailto:njwlee@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

파이로공정의 전처리공정인 휘발성 산화공정에서는 파이로공정의 부하 저감을 위해 휘발성 및 준휘발성 핵분열생성물의 휘발제거와 동시에 전해환원공정의 처리효율을 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[1]. 현재 고온 휘발성 산화공정을 적용한 경우에 원료입자의 형태는 다공성 그래뉼형 및 펠렛형[2]으로 구분하여 연구 중이다. 본 연구에서는 회전형 voloxidizer 및 200 g U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말을 이용하여 입자층의 운동형태, 열처리 온도 및 시간, voloxidizer의 회전속도에 따른 그래뉼 회수율과 특성을 분석하였다.

### 2. 실험

다공성 입자는 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말 200 g를 휘발성 산화장치에 장입한 후에 반응 온도는 1150과 1200°C, 반응시간은 5에서 10시간, 회전속도는 1에서 5 rpm으로 하여 제조하였다. 열처리는 Ar분위기 하에서 수행하였다. 최대 열처리 온도는 voloxidizer의 재질인 Inconel alloy 601의 용점을 고려하여 1200°C로 제한하였다. 열처리 생성 입자들의 입도는 회전방식의 회전체(Retsch사 AS400)를 이용하여 분석을 하였다. 밀도 및 기공율, 구형도, 과쇄강도등과 같은 그래뉼 특성을 측정하였다.

### 3. 결과 및 토의

Voloxidizer에 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말 200 g를 장입한 후에 1~5 rpm으로 voloxidizer를 회전시키면서 상온에서의 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 미세 입자층의 운동을 CCD 카메라로 관찰한 결과에 의하면 1~3 rpm에서는 slumping 운동 형태로 4~5 rpm에서는 rolling 운동 형태

를 보였다. 초기 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 미세 입자층의 운동 형태에 따른 입도 제어 및 특성을 분석하기 위해서 voloxidizer의 회전속도를 각각 2 rpm 및 5 rpm로 하여 1150°C에서 5시간동안 Ar 분위기하에서 열처리를 하였다. 열처리하여 얻은 입자층의 운동 형태를 알아보기 위해 voloxidizer를 2~5 rpm으로 회전시키면서 입자층 유동을 관찰한 결과에 의하면 열처리시 적용했던 회전속도와는 관계없이 모두 slumping 운동 형태를 보였다. 열처리하여 얻은 입자층의 slumping 수는 2 rpm에서는 62 slumps/min로, 5 rpm에서는 89 slumps/min로 높았다. 그래뉼 회수율은 slumping 수가 낮은 2 rpm에서는 73%로 5 rpm에서의 61%보다 높았다.

Voloxidizer의 회전속도를 2 rpm으로 일정하게 하고 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말의 열처리 온도 및 시간이 생성 입자의 입도 및 특성에 미치는 영향을 분석하였다. 열처리 조건은 1150~1200°C, 5~10 시간동안 Ar 분위기에서 수행하였다. Fig. 1은 평균입도가 10 μm인 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말을 1200°C, 10시간동안 열처리하여 얻은 UO<sub>2+y</sub> ( $0.25 \leq y < 0.667$ ) 입자의 형상을 나타낸 사진으로 입자들은 대부분 1 mm 이상의 동근 형태를 보였다.

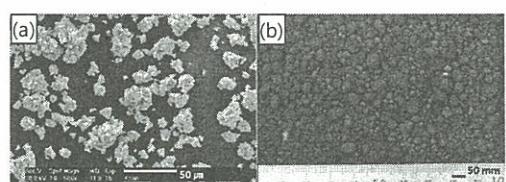


Fig. 1. Change of particle shape and size; (a) starting and (b) product

각 열처리 조건별로 얻어진 생성 입자들에 대해 입도분석을 하여 Fig. 2에 나타내었다. 생성 입자들은 주로 0.5~10 mm이며, 최대 분포를 보이는 입자크기는 2~5 mm였다. 최대 분포 입자 관점에서 보면 열처리 온도 및 시간의 증가에 따라서 그 함량이 증가하였다. 그리고 그래뉼 회수

율은 열처리 온도 및 시간이 증가함에 따라서 증가하였으며 1200°C에서는 80% 이상의 회수율을 보였으며 10시간동안 열처리한 경우 84.5%의 높은 회수율을 보였다. 1200°C에서 열처리 시간이 5에서 20시간으로 증가함에 따라서 밀도는 3.5에서 4.38 g/cm<sup>3</sup> 까지 증가하였으며 기공율은 60에서 55.3%로 감소하였다. 구형도는 0.9 이상으로 높았으며 1200°C에서 10시간 열처리를 할 경우에 0.95로 가장 높았다.

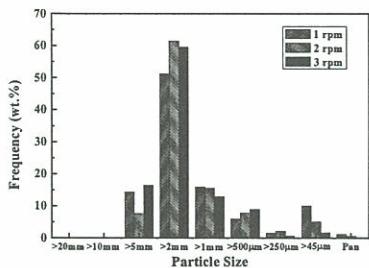


Fig. 2. Particle size distribution

회전속도가 입도 제어 및 특성에 미치는 영향을 분석하기 위해서 열처리 온도 및 시간을 각각 1200°C 및 10 h로 일정하게 하고 voloxidizer의 회전속도를 1~3 rpm으로 변화시키면서 입도제어 실험을 하였다. 입도분석을 한 결과에 의하면 그래늘 회수율은 voloxidizer 회전속도가 1에서 3 rpm으로 증가함에 따라서 81.5%에서 88.7%까지 증가하였다. 그러나 그래늘의 밀도 및 파쇄강도는 2 rpm에서 제조된 경우에 각각 4.38 g/cm<sup>3</sup> 및 17 N으로 가장 높았다.

#### 4. 결론

회전형 voloxidizer 및 200 g U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말을 이용하여 입자층의 운동형태, 열처리 온도(1150~1200°C) 및 시간(5~10 h), voloxidizer의 회전속도(1~5 rpm)에 따른 그래늘 회수율과 특성을 분석한 결과에 의하면 그래늘 제조조건은 1200°C, 10 h, 2 rpm이 가장 좋았다.

#### 5. 참사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

#### 6. 참고문헌

- [1] J. J. Park, J. M. Shin, G. I. Park, Jae W. Lee, J. W. Lee and K. C. Song, "An Advanced Voloxidation Process at KAERI", Global 2009, Paris, 2009.
- [2] Y. Sakamura, et al., "Development of Oxide Reduction Process to Bridge Oxide Fuel Cycle and Metal Fuel Cycle", Global 2009, Paris, 2009.