

산화온도에 따른 U_3O_8 분말의 입도분포

나상호, 유명준*, 황형진, 신진명, 박장진

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045

*한전원자력연료(주), 대전시 유성구 덕진동 493

shna@kacri.re.kr

1. 서론

세라믹핵연료인 이산화우라늄(UO_2)은 경수로(LWR)형 연료로, 현재 세계원자력발전의 주종을 이루고 있다. 향후 우라늄 자원의 고갈 및 사용후핵연료의 저장부담을 해소하고자 사용후핵연료에 대한 재활용연구가 많이 수행되고 있다. 일반적으로 이산화우라늄을 원자로서 연소시킬 경우, 연료봉의 길이 방향에 따라 연소도가 다르게 나타나며, 이 차이에 따라 우라늄의 농축도, TRU 및 생성되는 핵분열생성물의 양이 다르므로 재활용 및 계량 관점에서 균질화가 요구된다. 사용후 이산화우라늄을 재활용하기 위해서는 우선적으로 피복관에서 사용후핵연료를 용이하게 인출하기 위해서 주로 산화시켜 U_3O_8 분말로 만든다.

최적의 분말 균질화는 분말의 입도가 가장 중요하다. 분말이 미세할수록 균질화는 향상되며, 미립의 분말을 제조하기 위해서는 산화속도, 산화온도 그리고 시간 등의 변수를 잘 조절해야 한다.

본 연구에서는 이러한 변수 중에서 산화속도 및 산화시간을 일정하게 하고 산화온도를 변수로 하여 산화온도에 따라 생성된 U_3O_8 분말의 결보기 밀도와 입도분포(sieve test)를 조사하였다. 입도분포 측정용으로 레이저를 이용한 기존의 습식·건식 측정장치를 사용하지 않고 sieve를 이용한 것은 입도 분포가 광범위하여 레이저 측정 장치로는 적합지 않은 것으로 나타났기 때문이다.

2. 본론

2.1 시편 준비 및 실험 방법

CANDU 형 소결체(96%T.D.)를 백금 도가니에 넣고 muffle furnace에서 분당 4°C 로 승온하였고, 산화시간은 10시간으로 일정하게 하였다. 산화온도는 6조건($350, 400, 450, 500, 600, 700^\circ\text{C}$)으로 하였다. 산화된 분말의 결보기밀도는 ASTM B212-89의 방법으로 측정하였으며, 분말입도는 10단(구멍크기(μm)) ; 355, 250, 125, 106, 90, 75,

63, 45, 38, 32)으로 구성된 sieve에서 U_3O_8 분말을 50g 장입하여 sieve shaker를 사용하여 40분간 흔들어준 후 sieve에 남아있는 것을 계량하였다. 산화된 분말의 U_3O_8 확인은 XRD(Mac Science)로 하였다.

2.2 실험 결과

Fig. 1에 산화온도에 따라 생성된 산화분말의 XRD 패턴을 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 산화온도 $350^\circ\text{C} \sim 700^\circ\text{C}$ 에서 승온속도 분당 4°C 로 10시간 유지한 경우에는 모두 U_3O_8 으로 나타났다.

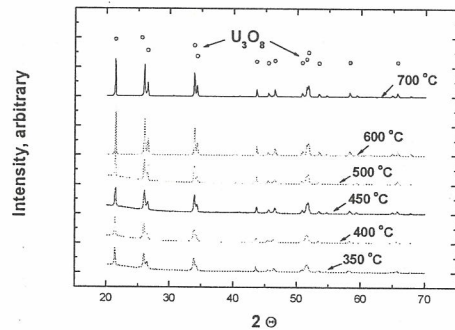


Fig. 1. XRD pattern vs. oxidizing temperature.

Fig. 2에 산화온도에 따른 U_3O_8 분말의 sieve test 결과를 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 산화온도가 높아질수록 분말의 입자크기는 증가하는 경향을 보여준다. 그림에서 가장 작은 입자크기를 $10\mu\text{m}$ 으로 나타낸 것은 sieve size에서 가장 작은 $32\mu\text{m}$ 을 통과한 것을 임의의 크기로 잡았기 때문이다. 또한 $10\mu\text{m}$ 미만의 백분율도 산화온도가 작을수록 커지는 경향을 보여준다. 결과적으로 산화분말의 입자크기를 가능한 한 작게 하기 위해서는 산화온도가 낮은 쪽이 바람직한 것으로 나타났다.

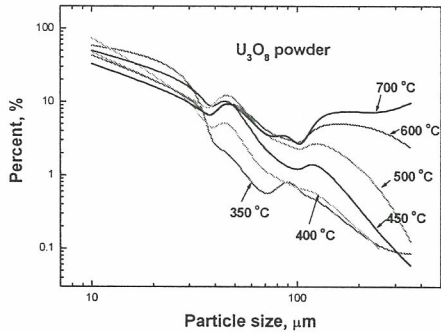


Fig. 2. Distribution of U_3O_8 particle size according to the oxidizing temperature.

Fig. 3에 U_3O_8 분말의 산화온도에 따른 겉보기 밀도를 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 분말의 겉보기밀도는 산화온도가 증가할수록 증가하는 경향을 보여준다. 이는 산화온도가 증가할수록 산소가 UO_2 소결펠렛의 결정립계를 빠르고 깊숙이 파고들어 소결펠렛에서 박리되기 때문인 것으로 사료된다.

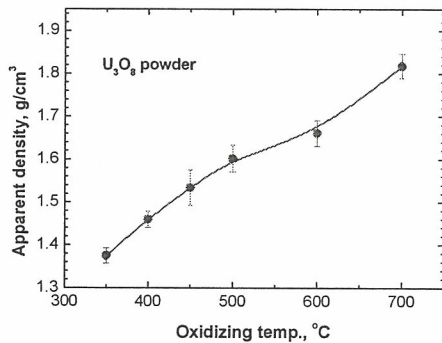


Fig. 3. Apparent density vs. oxidizing temperature.

Fig. 4에 450 °C에서 산화시킨 U_3O_8 분말의 전형적인 입자 사진을 나타내었다. 산화온도에 관계없이 콜리 플라우워(cauliflower) 모양을 이루고 있다.

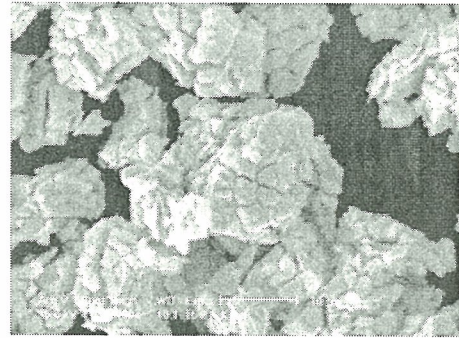


Fig. 4. SEM of U_3O_8 particle (at 450°C, 10-hr).

3. 결론

CANDU 형 UO_2 소결펠렛(96%T.D.)의 산화온도에 따른 산화분말의 XRD 패턴과 겉보기밀도 그리고 입자크기를 조사하여 다음과 같은 결과를 구하였다.

- XRD 패턴 분석결과 산화온도 350 °C~700 °C 구간에서 생성되는 산화분말은 모두 U_3O_8 으로 나타났다.
- 산화온도가 증가하면 분말의 입도는 증가하는 경향을 보여주며, 10 μm 미만의 미립은 감소하는 것으로 나타났다.
- 산화온도가 증가하면 분말의 겉보기밀도는 증가하는 것으로 나타났다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력중앙기과제의 일환으로 수행되었습니다.