

## 원료물질 제조공정 특성 평가

이재원, 윤여완, 신진명, 이영우, 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 처리효율 증대를 위한 원료물질 제조 연구를 수행하고 있다. 전해환원공정의 처리효율을 증대시키기 위한 원료물질 조건으로는 전해질의 침투가 용이한 다공성 구조, 충전 밀도를 높고 염 동반배출이 낮은 형태, 형태안정성 유지 등이 있다[1]. 고온에서 핵종을 휘발하면서 원료물질을 제조할 수 있는 공정별도(Fig. 1) 동일한 온도에서 열처리를 하여 얻은 다공성 원료물질의 제조특성을 평가하였다.

### 2. 실험

출발물질인  $U_3O_8$  분말은  $UO_2$  펠렛을 회전로에서  $500^\circ C$ 에서 산화하여 제조하였다. 다공성 그래놀은 회전로에  $U_3O_8$  분말 200 g를 장입하여 Ar 분위기하에서  $1200^\circ C$ , 10시간, 회전속도는 2 및 3 rpm으로 하여 제조하였다. 다공성 펠렛은 운할제철가 없이 100~300 MPa에서 성형하여  $1200^\circ C$ 에서 10시간동안 소결하여 제조하였다.  $UO_2$  그래놀 및 펠렛은 4% $H_2$ -Ar 분위기하에서  $1000^\circ C$ , 5시간동안 환원하여 제조하였다. 다공성 원형평판은  $U_3O_8$  분말을  $1200^\circ C$ 에서 10시간동안 열처리를 한 후에 형성된 응집체를 진동 체질을 하여 1 mm 이하의 응집체로 만들었다. 응집체를 흑연 몰드에 주입한 후에 압력을 20 MPa하여  $1200^\circ C$ 에서 2시간동안 가압소결을 해서 제조하였다.

### 3. 결과 및 토의

입자크기가 1 mm 이상인 다공성 그래놀의 회수율은 voloxidizer의 회전속도에 영향을 받으며, 2 rpm에서 그래놀의 회수율은 84.5%, 0.5 mm 이상 입자의 회수율은 92.3%였다. 회전속도 3 rpm에서 그래놀의 회수율은 88.7%, 0.5 mm 이상입자

의 회수율은 97.7%였다.  $UO_2$  그래놀의 밀도는  $4.38 g/cm^3$  (40% TD)였다.

$U_3O_8$  성형체의 밀도는  $4.35\sim 5.16 g/cm^3$ 로  $U_3O_8$  이론밀도의 51.6~61.3%였다.  $UO_2$  펠렛의 밀도는  $5.56\sim 6.13 g/cm^3$ 로 성형압력에 따라서 증가하였으나 이론 밀도의 50.7~55.9%로 그래놀 보다 밀도가 높았다.

동일한 열처리 온도지만 가압소결에 의해서 제조된  $UO_2$  원형평판의 밀도는  $7.54 g/cm^3$  (69% TD)로 가장 높았다.

기공율은 그래놀, 펠렛, 원형평판의 순서이다. 전해질 침투 측면에서 보면 그래놀 > 펠렛 > 원형평판 순서이다. 염 동반배출 양은 기공율이 낮을수록 작아지게 된다.

그래놀의 밀도는 사면체 충진을 할 경우에 충진율은 0.739로 그래놀의 충전 밀도는  $3.24 g/cm^3$ 로 예상된다. 펠렛의 충진율은 L/D비의 영향을 받으며 L/D=1.2인 경우에 충진율은 0.659로 충전 밀도는 약  $4.04 g/cm^3$ 로 예상된다. 따라서 전해환원공정의 회당 처리용량 면에서 그래놀보다 펠렛이 유리한다. 원형평판의 충전 밀도는 평판과 음극바스켓 크기에 따라서 크게 영향을 받게 된다.

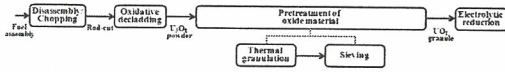
형태안정성은 밀도에 의해 결정되기 때문에 원형평판 > 펠렛 > 그래놀 순서이다.

그래놀 제조 공정은 단순하나 형태안정성이 낮다. 그래놀 밀도를 높이기 위해서는 보다 고온에서 사용할 수 있는 voloxidizer 재료가 요구된다. 현재 추천되고는 있는 재료로는 크리프 특성 및 고온 열부식성이 우수한 산화 분산 강화 재료인 Kanthal APM이 있으며,  $1300^\circ C$ 까지 사용할 수 있다.

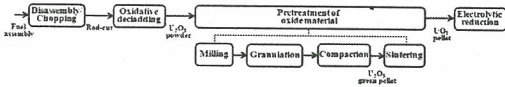
일반적으로 경수로형 사용후핵연료나 모의핵연료(SIMFUEL)는 연소도가 증가함에 따라서 소결체를 산화처리하는 동안에  $UO_2$  결정립과 동일한 형상의  $U_4O_9$  입자가 생성되며 함량이 증가하게 된다.  $U_4O_9$  입자의 생성은 SEM 형상 관찰과 X선 회절분석에 의해서 확인되었다. 따라서 성형성 및 소결성을 증가시키기 위해서는 펠렛 제조공정에서는 산화분말을 밀링을 하여 성형하여 소결함으

로써 건전한 성형체와 소결체를 얻을 것으로 여겨진다. 또한 밀링에 의해 비표면적이 증가함으로 소결온도를 낮출 수 있을 것으로 여겨진다.

(1) 그레놀 제조



(2) 펠렛 제조



(3) 원형평판 제조

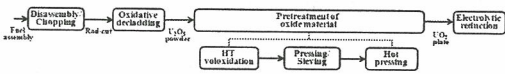


Fig. 1. Feed preparation processes

4. 결론

다공성 그레놀 및 펠렛의 밀도를 증가시키기 위해서는 소결온도를 높여야 할 것으로 여겨진다. 다공성 펠렛의 제조시에 밀링 공정을 도입할 경우에 비표면적이 증가함으로 소결온도를 낮출 수 있을 것으로 여겨진다.

5. 감사의 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