

산화성 분위기하에서 다공성 UO_{2+x} 소결펠렛 제조

II. CO_2 가스 분위기

나상호, 신희성, 김호동, 김기홍, 유명준*

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 989번길 111

*한전원자력연료(주), 대전시 유성구 덕진동 493

shna@kaeri.re.kr

1. 서론

세라믹핵연료인 이산화우라늄(UO_2)은 현재 세계원자력발전 연료의 주종을 이루고 있다. 향후 우라늄 자원의 고갈 및 사용후핵연료의 저장부담을 해소하고자 습식 및 건식 기술을 이용한 사용후핵연료의 재활용에 대한 연구가 많이 수행되고 있다. 건식기술인 파이로프로세싱은 핵비확산과 핵투명성이 있는 기술로 알려져 있으며, 전처리, 전해환원, 전해정련 및 전해제련 등의 공정으로 구성된다. 이 중에서 전처리공정은 사용후핵연료를 전해환원에 적합한 형태로 만드는 공정으로, 일반적으로 연료봉에서 UO_2 소결펠렛을 인출하기 위하여 탈피복하는 과정에서 산화시킨 U_3O_8 분말을 사용하여 성형 및 소결을 통해 수행된다. 전처리공정에서 제조된 제품의 특성은 전해환원에 중요한 영향을 미치는 인자 중의 하나이다.

여기에서는 사용후핵연료 대신 조사되지 않은 (unirradiated) UO_2 소결펠렛을 산화시킨 U_3O_8 분말을 이용하여 성형하였으며, 산화성 분위기 중에서 CO_2 가스 분위기에서 성형압력 및 소결온도의 변화에 따른 소결펠렛의 특성을 분석하였다.

2. 본론

2.1 시편 준비 및 실험 방법

약 96%T.D.의 소결밀도를 갖는 UO_2 소결펠렛을 $450\text{ }^\circ\text{C}$ 에서 4시간 공기분위기에서 산화시키면 U_3O_8 분말이 된다[1,2]. U_3O_8 분말을 유압프레스에 장입하여 3 종류의 성형압력(150, 300, 450 MPa)으로 원통형의 성형체를 제조하였다. 제조된 성형체의 성형밀도는 기하학적 방법으로 측정하였으며, 150, 300 그리고 450MPa에서 제조된 성형체의 성형밀도는 각각 61~63%T.D., 66~68%T.D. 그리고 70~72%T.D.로 측정되었다. U_3O_8 와 UO_2 의 이론밀도는 각각 8.34 g/cm^3 이

10.96 g/cm^3 이다. 각각의 조건으로 제조된 성형체는 지르코니아 용기에 담아 बै치형(batch-type)의 소결로에 장입한 후, 이산화탄소(CO_2) 가스 분위기에서 6조건의 소결온도($900\sim 1400\text{ }^\circ\text{C}$)로 소결하였다. 소결유지시간은 각각의 소결온도에서 2시간으로 하였으며, 승온 및 냉각속도는 모두 분당 $4\text{ }^\circ\text{C}$ 로 하였다. 소결펠렛의 O/U비는 ASTM C-1453에 따라 측정하였으며, 소결밀도는 수침법 (immersion method)으로 측정하였다. 소결펠렛의 조직은 전자현미경(SEM)으로 관찰하였다.

2.2 실험 결과

1) O/U 비

Fig. 1에 CO_2 가스 분위기에서 소결펠렛의 소결온도에 따른 O/U비를 나타내었다.

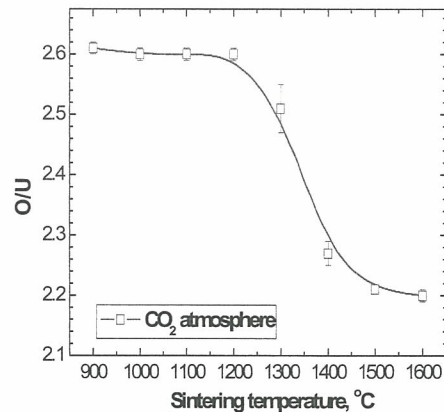


Fig. 1. O/U vs. sintering temperature in the CO_2 atmosphere.

그림에서 보는 바와 같이 소결펠렛의 O/U비는 $1200\text{ }^\circ\text{C}$ 까지는 약 2.60으로 평탄하였으나 그보다 큰 온도에서는 O/U비가 급격하게 감소하다가 $1500\text{ }^\circ\text{C}$ 이상의 온도에서는 약 2.20으로 평탄화되

는 경향을 보여준다. 즉 1200℃~1400℃구간에서 O/U비가 급격하게 변하는 경향을 보여준다.

2) 성형압력 및 소결온도에 따른 소결밀도

Fig. 2에 성형압력 및 소결온도에 따른 소결밀도를 도시하였다.

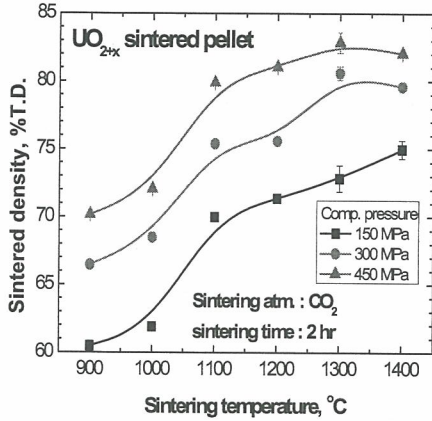


Fig. 2. Sintered density vs. sintering temperature according to the varying compacting pressure.

그림에서 보는 바와 같이 성형압력이 증가하면 소결밀도가 증가하는 경향을 보여준다. 또한 소결온도도 증가하면 소결밀도도 증가하는 경향을 보여주지만, 1200℃까지는 급격하게 증가하다가 그 이상의 온도에서는 포화되는 경향을 보여준다. 또한 성형압력이 증가할수록 포화되는 경향이 뚜렷해짐을 보여준다.

3) 소결온도에 따른 소결펠렛 미세구조

Fig. 3에 성형압력 300MPa로 성형한 성형체의 CO₂ 가스 소결분위기하에서 소결온도(소결시간 : 2 시간)에 따른 소결펠렛의 미세구조를 나타내었다.

그림에서 보는 바와 같이 소결온도 900~1100℃ 구간에서는 U₃O₈ 분말입자의 단순한 결합, 1200℃이상이 되어야 분말입자간의 결합후 성장, 1400℃가 되어야 비로소 입자간 성장이 뚜렷하며 생성되는 기공의 형태도 둥글게 나타났다. 또한 온도에 관계없이 내부의 기공들이 표면과 연결되는 것으로 판단된다.

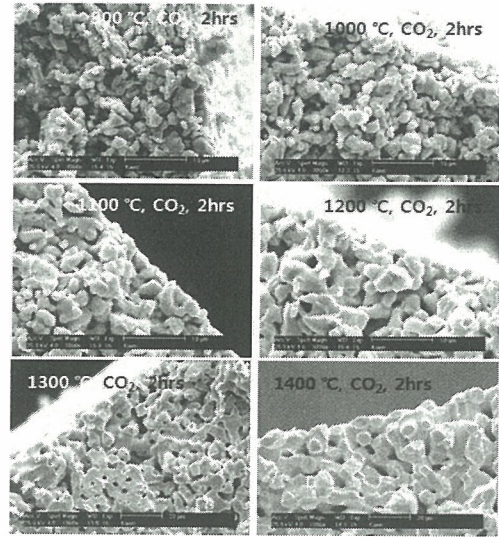


Fig. 3. Microstructure of UO_{2+x} sintered pellet with varying sintering temperature (compaction pressure : 300 MPa)

3. 결론

U₃O₈ 분말로 성형한 성형체를 CO₂ 가스 분위기에서 소결하여 다음과 같은 결과를 구하였다.

- CO₂ 가스 분위기에서 소결하면 소결펠렛의 O/U비는 온도 증가에 따라 감소하는 경향을 보여주었다.
- UO_{2+x} 소결펠렛의 소결밀도는 성형압력 증가에 따라 증대하며, 또한 소결온도가 증가할수록 소결밀도는 증가하나 1200℃ 이상에서는 거의 포화되는 경향을 보여주었다.
- 소결펠렛의 미세구조는 소결온도에 따라 U₃O₈ 입자간 결합, 입자결합후의 성장 그리고 충분한 성장과 둥근 형태의 기공이 존재하는 것으로 나타났다.

4. 참고문헌

[1] 나상호 외, "산화온도에 따른 U₃O₈ 분말의 입도분포," 2011 한국방사성폐기물학회 추계학술대회 논문요약집, pp.163-164.
 [2] S.H. Na et al., "Effect of oxidizing time on the U₃O₈ formation characteristics at 450℃," 2011 한국분말야금학회 추계학술대회, KP-018.

5. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력증장기과제의 일환으로 수행되었습니다.