

## 사용후핵연료 분말의 균질화

### II. Ce함량이 다른 (U,Ce)O<sub>2</sub> 분말

나상호, 한보영, 김연실, 송대용, 박세환, 신희성, 김호동, 김기홍, 유명준\*

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 989번길 111

\*한전원자력연료(주), 대전시 유성구 덕진동 493

shna@kaeri.re.kr

#### 1. 서론

사용후핵연료봉의 연소도 프로파일은 일반적으로 높낮이만 다를뿐 연료봉마다 비슷하며, 동일한 연료봉에서도 축방향의 길이에 따라 연소도는 다르게 나타난다. 이와 같은 연소도 차이로 인하여 우라늄이나 플루토늄 같은 핵분열물질, 초우라늄물질(TRU) 그리고 핵분열생성물의 존재 분포비가 다르게 되며, 또한 Fig. 1에 도시한 바와 같이, 핵연료에도 결정립과 같은 미세구조에 변화를 야기한다[1].

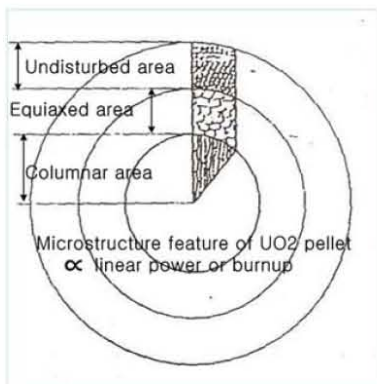


Fig. 1. Microstructure feature of spent UO<sub>2</sub> pellet.

따라서 사용후 UO<sub>2</sub>를 산화시킬 경우, 이와 같은 결정립 크기에 따라서 산화되는 분말입자의 크기가 달라지므로, 혼합하지 않거나 입자크기가 다른 것을 적절히 혼합하지 않을 경우, 편석(segregation)의 가능성이 존재하여[2] 균질도를 샘플링에 의존할 때 분석값의 편차가 확대되어 물질량의 수치를 정확히 추적하기가 어려워지므로, 균질화는 매우 중요한 공정으로 사료된다.

여기에서는 연소도 차이로 인하여 일어나는 사용후 UO<sub>2</sub>의 결정립 크기를 고려하고자 연소도 3만과 12만 MWd/MTU를 모사한 모의물질 SS-1(CeO<sub>2</sub> : 1.62wt% 함유)과 SS-4(CeO<sub>2</sub> : 6.25wt% 함유)를 사용하여 혼합과 밀링에 의한 Ce 농도를 분석함으로써 균

질화에 미치는 영향을 조사하고자 한다.

#### 2. 본론

##### 2.1 시편 준비 및 실험 방법

약 95%T.D.의 밀도와 약 10 μm의 결정립 크기를 갖는 SS-1과 SS-4를 각각 350 °C(10시간)와 700 °C(1시간)에서 산화시켰다. 산화시킨 SS-1과 SS-4 분말의 사진을 Fig. 2에 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이, SS-1(약 10μm)에 비해 SS-4(50μm)의 입자크기는 아주 큰 것으로 나타났다.

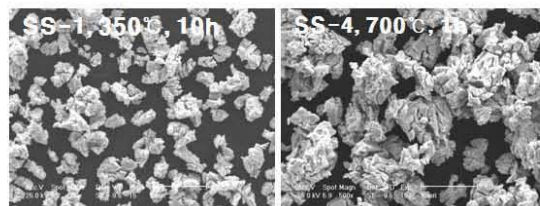


Fig. 2. Oxidized powder morphology of SS-1 and SS-4.

SS-1과 SS-4의 혼합비를 2조건(1:2 & 2:1)으로 각 조건당 무게는 40g으로 하였다. SS-1과 SS-4의 분말혼합은 Tubular mixer를 사용하였고, 혼합시간은 3조건(30분, 60분 & 120분)으로 하였으며, 밀링은 본 연구원에서 개발한 다이아믹 밀[3]을 사용하였고, 10분 혼합한 후 밀링시간은 3조건(10분, 30분 & 60분)으로 수행하여 샘플링한 것을 화학분석에 의한 Ce 농도를 조사하였다.

##### 2.2 실험 결과

Fig. 3에 SS-1과 SS-4의 혼합비에 따라 단순 혼합과 밀링을 하였을 경우, 혼합 및 밀링시간에 따른 Ce 농도를 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이, 혼합비에 관계없이 단순혼합만으로는 실제 값에 이르기 위해서는 상당히 긴 시간이 요구됨을 알 수 있다. 반면에 밀링을 한 경우에는 짧은 시간에 실제값에 도달함을 알 수 있다.

한편, SS-1/SS-4 혼합비 1:2보다는 2:1에서 즉 SS-1의 함량 즉 입자가 작은 성분이 많을수록 단순혼합만을 한 경우에는 실제값에 도달하기 위해서는 장시간이 요구되는 반면에 농도 분포의 편차는 작음을 보여준다. 이는 작은 크기의 분말이 상대적으로 많아지면 샘플링을 할 경우 조대분말보다는 미세분말을 취하기가 용이하여 편차는 작아지나 실제값에 도달하기가 어려움을 보여준다. 밀링을 하는 경우에는 조대분말이 많아질수록 Ce 농도의 편차는 크게 나타났는데, 이는 조대분말의 미분쇄가 충분히 이루어지지 않은 것으로 사료되어, 조대분말이 많아질수록 좀 더 많은 밀링시간이 요구된다.

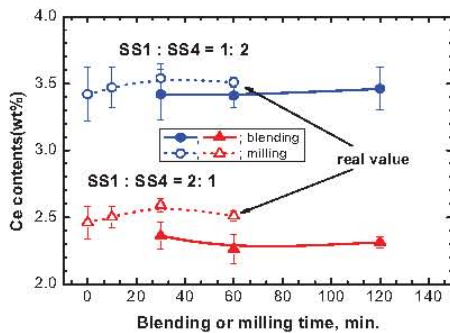


Fig. 3. Ce contents vs. blending or milling time according to the mixing ratio of SS-1 and SS-4.

Fig. 4와 Fig. 5에 각각 SS-1 : SS-4의 혼합비 1:2와 2:1에서 혼합시간 및 밀링시간에 따른 분말의 형태를 SEM 사진으로 나타내었다.

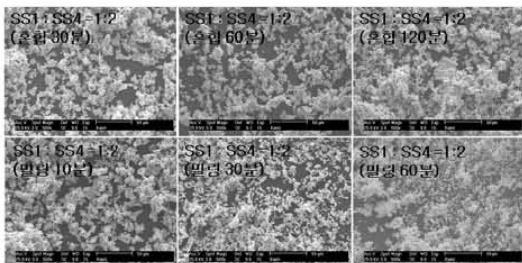


Fig. 4. Blend and milled powder morphology at the mixing ratio of 1(SS-1):2(SS-4), respectively.

사진에서 보는 바와 같이, 단순혼합에 의해서는 미세분말과 조대분말의 혼합이 잘 이루어지지 않으며, 밀링을 하는 경우 조대분말이 분쇄됨을 보여준다.

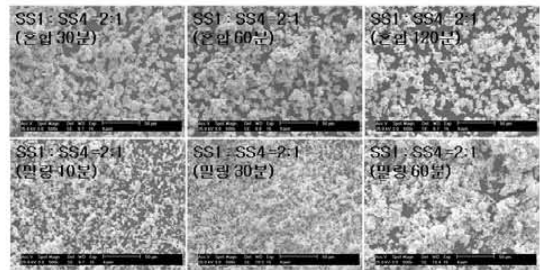


Fig. 5. Blend and milled powder morphology at the mixing ratio of 2(SS-1):1(SS-4), respectively.

### 3. 결론

분말입자 크기가 다른 두 종류의 (U,Ce)O<sub>2</sub> 분말(SS-1과 SS-4)을 사용하여 혼합비에 따라 혼합과 밀링에 의한 Ce 농도를 조사하여 균질화에 미치는 다음과 같은 결과를 얻었다.

- 입자크기가 다른 분말을 단순혼합하는 경우, 장시간이 요구되어도 실제값에 도달하기 어려우며, 편차의 폭은 큰 것으로 나타났다.
- 미세분말이 많은 경우, 혼합 및 밀링시에 편차의 폭은 작으나 단순혼합하는 경우에는 실제값에 도달하기 어려운 것으로 나타났다.
- 입자크기가 다른 분말을 혼합하는 경우에는 혼합분말의 균질도를 향상시키기 위해서는 분말을 미세화하는 밀링공정이 꼭 필요한 것으로 사료된다.

### 4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력증장기과제의 일환으로 수행되었습니다.

### 5. 참고문헌

- [1] 나상호, 핵연료주기개론, 한국원자력연구소, 1992, p.154.
- [2] 진환 외, 분체공학, 동화기술, 2005, p.254.
- [3] 나상호 외, 다이나믹 밀, 일본특허, 특허제 3722789호(平成 14년).