

PRIDE 시설에서의 30 kg-U/batch 규모 UO₂ 다공성펠릿 제조

전상채*, 이주호, 이광연, 이재원, 조용준

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*scjeon@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로프로세싱의 출발인 전처리 공정에서는 피복관으로부터 사용후핵연료를 회수하고 이를 이용하여 후속공정인 전해환원용 원료물질을 제조한다. 대표적인 원료물질로 파쇄펠릿(fragment)과 다공성펠릿(porous pellet)이 있으며 이들의 형태는 전처리 공정 중의 탈피복(decladding) 방법에 따라 결정된다. 주요 탈피복 방법 중 하나인 산화탈피복(oxidative decladding)을 거치면 UO₂ 펠릿 형태이던 핵연료는 U₃O₈ 분말이 되며 이를 출발물질로 하여 성형, 소결 등의 세라믹 공정을 통해 다공성펠릿(porous pellet) 형태의 전해환원용 원료물질을 제조할 수 있다[1-3]. 다공성 펠릿은 내부에 기공이 다수 형성되어 전해환원이 용이하면서도 파쇄펠릿에 비해 견고한 구조로 취급이 용이하고 적층 밀도(packaging density)가 높아 전해환원용 원료물질의 제조공정상 여러 가지 이점이 있다[3].

한편, 실제 파이로프로세싱 시설에서 전해환원용 다공성펠릿을 제조하기 위해서는 실험실 규모(lab scale)에서 집적된 기술을 바탕으로 공학규모(engineering scale)로 공정을 scale-up 해야 한다. 본 논문은, 공학규모인 PRIDE 시설에서 다공성펠릿을 제조하기 위해 장치를 제작하고 공정을 수정하여 30 kg-U/batch 규모로 다공성펠릿 제조 공정을 검증한 내용을 담았다. 또한, 공정변수 최적화 관점에서 필요한 성형압력에 따른 소결 밀도 등을 살펴본 후 향후 공학규모 다공성펠릿 제조에 활용될 수 있는 기초자료를 확보하였다.

2. 본론

공정의 규모를 증대시키기 위해서는 공정 자체의 수정에 더해 장치의 scale-up이 필수적이다. 그림 1은 본 실험에서 처리용량을 증대시키기 위해 구축된 장비의 도면 및 사진을 나타낸다. Fig. 1(a)에 회전식 산화처리장치, 1(b)에 rotary press의 구동부, 1(c)에 수직식 원통형 고온 열처리로의 도면을 나타내었다. 산화처리장치는 내부 반응기의 나선형

blade가 정방향 회전을 하면 투입된 원료물질이 내부로 이동되며 산화되고, 역방향 회전을 통해 산화가 완료된 분말을 회수하는 개념이 적용되었다. 또한, 한번에 처리할 수 있는 용량을 50 kg-U/batch 규모로 scale-up 하였다. Rotary press는 13 set의 펀치/다이가 장착된 구동부가 회전하면서 분말 투입-가압성형-펠릿 배출이 연속적으로 순환되는 구조로 시간당 최대 7 kg-U 이상의 제조수율을 갖는다. 고온 열처리로 역시 batch scale을 키우고자 ZrO₂ 도가니가 단단으로 적층되어 한번에 50 kg-U를 소결할 수 있도록 제작되었다. 또한, 열처리로 상단부에 새로운 개념의 dual block 구조를 적용하여 발열체 교체가 용이하도록 했다.

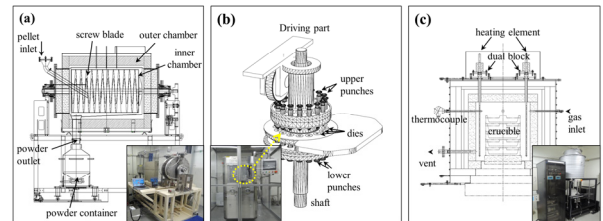


Fig. 1. Schematic drawings and photographs of (a) rotating drum furnace for oxidation, (b) driving part of rotary press for pelletizing, and (c) sintering furnace constructed in PRIDE.

산화공정-성형공정-소결공정에 따라 이들 장비를 이용하여 각각 산화분말, 성형펠릿, 소결펠릿을 제조하였으며 그림 2에 나타내었다. 소결펠릿의 경우 일부에서 end cap 및 delamination 결함이 관찰되었는데 이는 성형시 펠릿표면과 다이표면 사이의 마찰에 의한 것으로, 본 실험에서는 공정 중 펀치와 다이 내벽 표면에 결함이 생기고, 결함 표면에 분말이 응집되어 마찰이 생긴 것으로 판단된다. 이 경우 펀치와 다이 내벽을 초경금속으로 코팅하면 개선할 수 있다.

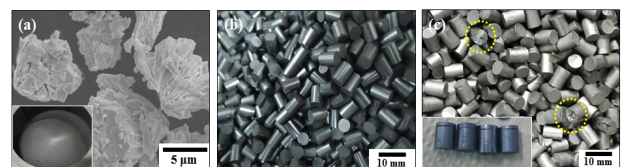


Fig. 2. Produced (a) U₃O₈ powders, (b) U₃O₈ pellets, and (c) UO₂ sintered pellets after oxidation, pelletizing, and sintering process, respectively.

제조된 UO_2 다공성 펠릿은 XRD 및 SEM 분석을 통해 상과 미세구조를 관찰하여 Fig. 3에 나타내었다. XRD 분석을 통해 제조된 다공성 펠릿이 순수한 UO_2 phase임을, SEM 관찰을 통해 다공성 미세구조임을 볼 수 있다. 평균 기공의 크기는 $5.25 \mu m$ 로 전해환원에 적합한 화학적, 물리적 상태로 펠릿이 제조되었음을 확인하였다.

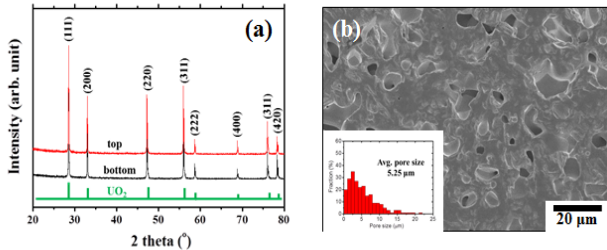


Fig. 3. XRD analysis and SEM observation of produced sintered pellets.

소결펠릿의 밀도는 염 내 전해환원시 환원 효율에 직접적인 영향을 준다[ref]. 환원에 적합한 밀도를 갖는 펠릿 제조를 위해 성형압력에 따른 소결밀도를 측정하여 Table 1에 나타내었다. 성형압력의 증가에 따라 성형 펠릿의 밀도와 소결 밀도는 선형적으로 증가하였으며 소결된 UO_2 다공성 펠릿의 밀도는 $60\sim 68\%$ TD(UO_2 의 Theoretical density $10.96 g/cm^3$ 기준)의 범위로 전해환원 공정에 적합함을 확인하였다.

Table 1. Green and sintered density and % TD (Theoretical Density) of pellets under different compaction pressures

Compaction Pressure (MPa)	Pellet height (mm)	Pellet weight (g)	Green Density (g/cm^3)	% TD*
106 {33}	6.78 {0.03}	1.17 {0.03}	5.05 {0.13}	60.33 {1.51}
160 {43}	6.34 {0.03}	1.19 {0.03}	5.50 {0.14}	65.73 {1.63}
206 {52}	6.02 {0.06}	1.17 {0.03}	5.70 {0.11}	68.14 {1.37}

또한, 공정변수의 최적화를 위한 기초자료 생산의 관점에서 성형압력에 따른 성형밀도와 소결밀도의 관계를 살펴보았으며 Fig. 4에 나타내었다.

3. 결론

PRIDE 시설에서 공학규모 파이로프로세싱 공정을 위한 다공성펠릿 형태의 전해환원용 원료물질 제조실험을 수행하였다. $50 kg-U/batch$ 규모의 장

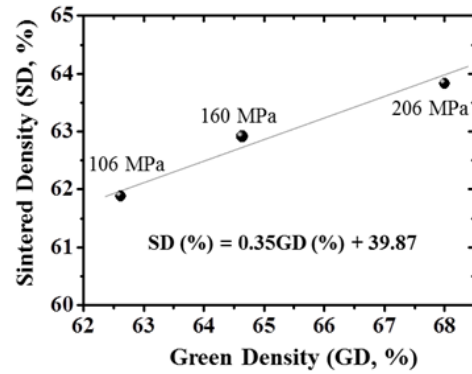


Fig. 4. Relationship between green density and sintered density of porous pellet with compaction pressure.

치를 구축하여 실험실 규모에서 기 검증된 세라믹 공정을 통해 $30 kg-U/batch$ 규모로 전해환원에 적합한 밀도범위를 갖는 UO_2 다공성펠릿을 제조하였다. 또한, 성형압력에 따른 성형 및 소결밀도의 관계를 파악하여 향후 공정 최적화를 위한 기초자료를 생산하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 미래창조과학부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

- [1] Y. Sakamura and T. Omori, "Electrolytic reduction and electrorefining of uranium to develop pyrochemical reprocessing of oxide fuels," Nucl. Technol., 171, 3, 266-275, (2010).
- [2] S.-C. Jeon, J.-W. Lee, S.-J. Kang, J.-H. Lee, J.-W. Lee, G.-I. Park, I.-T. Kim, "Temperature dependences of the reduction kinetics and densification behavior of U_3O_8 pellets in Ar atmosphere," Ceram. Int., 41, 1, 657-662, (2014).
- [3] E.-Y. Choi, J.-K. Kim, H.-S. Im, I.-K. Choi, S.-H. Na, J.-W. Lee, S.M. Jeong J.-M. Hur, "Effect of the UO_2 form on the electrochemical reduction rate in a $LiCl-Li_2O$ molten salt", J. Nucl. Mater., 437, 178-187 (2013).