Journal of Korean Powder Metallurgy Institute
Vol. 15, No. 2, 2008

모의 사용후 핵연료를 이용한 질화물 핵연료 소결체 제조

류호진* · 이재원 · 이영우 · 이정원 · 박근일
한국원자력연구원 재순환핵연료기술개발부

Fabrication of Nitride Fuel Pellets by Using Simulated Spent Nuclear Fuel

Ho Jin Ryu*, Jae Won Lee, Young Woo Lee, Jung Won Lee and Geun Il Park
Korea Atomic Energy Research Institute 1045 Daedeok-daero,
Yuseong-gu, Daejeon 305-353, Korea
(Received February 14, 2008; Accepted March 5, 2008)

Abstract In order to investigate a nitriding process of spent oxide fuel and the subsequent change in thermal properties after nitriding, simulated spent fuel powder was converted into a nitride pellet with simulated fission product elements through a carbothermic reduction process. Nitriding rate of simulated spent fuel was decreased with increasing of the amount of fission products. Contents of Ba and Sr in simulated spent fuel were decreased after the carbothermic reduction process. The thermal conductivity of the nitride pellet was decreased by an addition of fission product element but was higher than that of the oxide fuel containing fission product elements.

Keywords : Spent nuclear fuel, Nitride fuel, Carbothermic reduction, Thermal conductivity

1. 서 론

원자력 발전소에서 연소된 후 방출되는 사용후 핵연료의 처분 효율성을 향상시키기 위해 장수명 고방사성 원소들의 소멸 처리 능력이 강화된 미래형 핵연료 개발이 요구된다. 질화물, 탄화물 등의 세라믹 핵연료는 현재 사용되고 있는 산화물 핵연료를 대체할 수 있는 미래형 핵연료 후보 소재로 활발히 연구되고 있다[1, 2].

질화물 핵연료는 표 1과 같이 높은 핵물질(U, Pu) 밀도(13.5 g/cm^3), 높은 융점(2,777°C)과 높은 열전도도, Na 냉각재 및 스테인리스강 피복관과 양립성을 포함한 우수한 핵연료 특성을 가지고 있으며 또한, 핵분열 과정에서 생성되는 장수명 핵종인 Np, Am, Cm 등 마이너액티나이드(minor actinide) 원소들을 모두 고용하는 특성이 있다[3, 4]. 그러므로 제 4세대(Generation IV) 액체금속 냉각 고속로용 핵연료 및 마이너액티나이드 소멸처리를 위한 가속기용 핵연료 재료로 활용이 기대되고 있다[5]. 그러나 질화물 핵연료는 질소의 대부분(96.6%)을 차지하는 N-14가 원자로 내에서 (n, p)반응과 (n, α)반응에 의해 각각 방사독성이 높은 C-14과 B-11을 생성하며 유효중성자를 흡수하여 노심의 중성자 경제성을 저하시킨다는 단점을 가지고 있다. 만일 N-15로 농축된 질소를 사용한다면 이러한 문제가 해결될 수 있다[6]. 또한 질화물 핵연료는 산화물이나 금속 핵연료에 비해 원자로 내에서의 조사 시험(irradiation test) 경험이 상대적으로 부족하여 검증을 위한 성능 데이터베이스 확보를 위한 추가 연구가 필요한 실정이다[2].

미국은 "Advanced Fuel Cycle Initiative(AFCI)", GEN-IV Initiative, Global Nuclear Energy Partnership(GNEP)" 등의 프로그램을 통해 미래형 핵연료 개발 연구를 적극적으로 추진하고 있다[7-9]. 이들 프로그램에서는 사용후 핵연료 내에 잔존하는 장수명

*Corresponding Author : [Tel : +82-42-868-8845; E-mail : hjryu@kaeri.re.kr]

Table 1. Comparison of material properties between oxide, carbide and nitride nuclear fuel

Properties	Oxide	Carbide	Nitride	Metal
Theoretical Density (g/cm^3)	11.1	13.6	14.3	15.6
Heavy Metal Density (g/cm^3)	9.8	12.9	13.5	14.1
Thermal Conductivity (W/mK) (500~1000°C)	2.5~5	15~21	14~22	18~25
Melting Point (°C)	2,750	2,436	2,777	1,155
Reference Composition	$(U_{0.8}Pu_{0.2})O_{1.97\text{-}1.98}$	$(U_{0.8}Pu_{0.2})C_{1.02\text{-}1.05}$	$(U_{0.8}Pu_{0.2})N_{1.0}$	U-20Pu-10Zr

마이너액티나이드 핵종을 고속로에서 연소와 동시에 소멸처리하여 사용후 핵연료 처분장의 방사독성과 열부하를 획기적으로 감소시키고자 마이너액티나이드를 함유한 고속로용 핵연료를 개발하고 있다. 현재 미국에서는(PuAmNp)N-ZrN 및 (UPuAmNp)N-ZrN 등의 질화물 핵연료가 제조되어 ATR(Advanced Test Reactor) 연구로에서 조사시험이 수행되었으며 2007년부터 프랑스 PHENIX 고속로에서 조사시험이 수행되고 있다[10].

질화물 핵연료는 질소 분위기에서 고온 탄소 환원반응(carbothermic reduction)에 의해 제조되는데(U, Pu)N의 제조공정을 예로 들면 다음과 같다. C/$(UO_2 + PuO_2)$ 몰분율이 2-2.5가 되도록 혼합하고 압분한 후 1550°C 이상의 온도에서 N_2-H_2 혼합 기체를 흘려주면(U, Pu)N 질화물이 형성되게 된다[11, 12]. 여기서 수소의 역할은 질화반응 후 잔류하는 탄소를 제거하는 것이다. 이를 반영한 화학 반응식은 아래와 같다.

$$(U,\ Pu)O_2 + (2+n)\ C + 1/2\ N_2 + 2n\ H_2 = (U,\ Pu)N + 2\ CO + n\ CH_4 \quad (1)$$

질화물 제조를 위해서는 처음부터 N_2-H_2 혼합 기체를 흘려주는 방법과 N_2 기체를 흘려서 고온 탄소환원 질화법을 수행한 후 N_2-H_2 혼합 기체를 흘려주어서 잔류 탄소를 제거하는 2단계 반응법이 사용될 수 있다. 탄소의 몰분율이 증가할수록 잔류 산소 함량이 줄어드는데 걸리는 시간이 짧아지게 되지만 반대로 잔류 탄소를 제거하데 걸리는 시간이 증가하게 되어 탄소 함량은 약 2.2-2.5 범위에서 조절되고 있다[13]. 또한 1400°C 이하의 온도 범위에서는 U_2N_3와 같은 고차질화물(sesquinitride)의 형성되기 쉬운데 이를 방지하기 위해 N_2 분위기를 Ar 분위기로 치환해 주어야 하며 모든 공정은 질화물의 산화를 방지하기 위해 고순도 Ar 분위기의 글로브 박스 안에서 수행되는 것이 바람직하다[14].

(U, Pu)N 전환체는 볼밀에서 미세 분말로 분쇄되고 200-400 MPa의 압력을 가하여 압분한 후 1600-1780°C 온도범위에서 Ar-H_2 또는 Ar 분위기를 사용하여 소결된다. 고속로용 핵연료는 약 75-80%의 상대밀도를 갖는 것이 고연소도에서 피복관과의 기계적 상호작용을 완화하기 위하여 권장되어지고 있다[15, 16].

국내에서의 질화물 핵연료에 대한 연구는 현재까지는 기술현황분석과 이론적 설계에 그치고 있으며 실제 질화물 핵연료를 대상으로 실험을 수행한 경험이 없는 실정이었다. 또한 사용후 핵연료나 모의 사용후 핵연료를 이용하여 재가공된 질화물 핵연료의 제조를 시도한 결과는 전 세계적으로 보고된 적이 없는 실정이므로 본 연구에서는 모의 사용후 핵연료(Simulated Spent Fuel, SIMFUEL)를 이용하여 재가공된 질화물의 제조 공정 및 소결체 특성을 분석하여 향후 사용후 핵연료를 이용한 질화물 핵연료 제조에 활용할 수 있는 기초 자료를 확보하고자 하였다.

2. 실험방법

그림 1은 모의 사용후 핵연료(SIMFUEL)를 이용하여 질화물 소결체를 제조하는 과정을 간략하게 도시하고 있다. 질화 반응 시험에 사용된 모의 사용후 핵연료의 조성은 고리 1호기에서 약 27,300 MWd/tU의 연소도까지 연소된 후 방출되어 10년간 저장된 사용후 핵연료를 대상으로 하여 계산하였다. 핵연료의 연소도(MWd/tU)는 단위무게의 우라늄이 핵분열에 의해 생성하는 열량의 척도로서 연소 시간에 따라 연소도가 증가하게 되며, 연소도가 증가함에 따라 잔류하는 핵분열 생성물 원소들의 함량이 증가하게 된다. 27,300 MWd/tU의 연소도에 해당하는 핵분열 생성물 원소의 총 함량은 약 2.7 wt%로 계산되었다. 주요 핵분열 생성물 원소들을 18종 선정하고 확보가

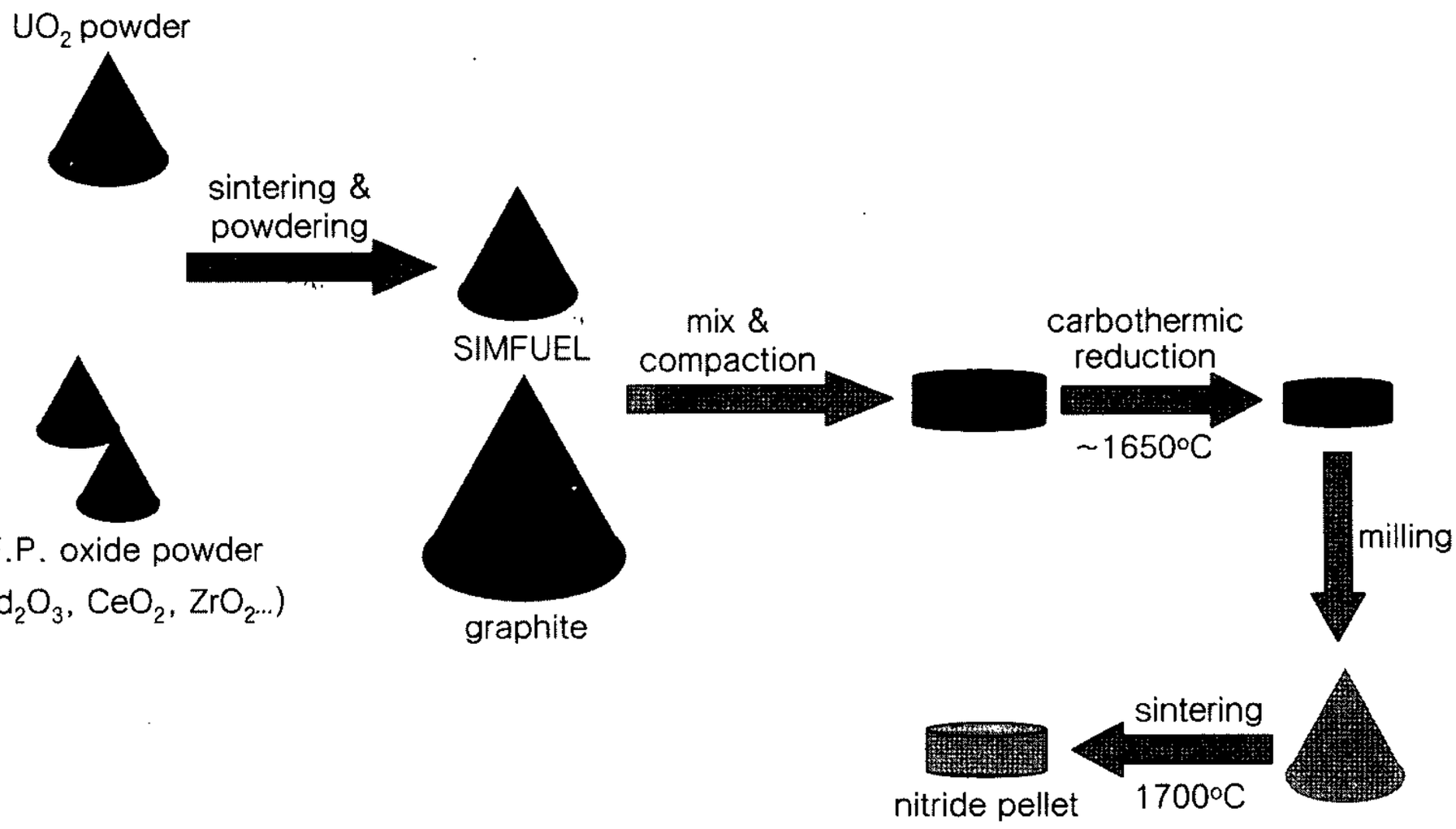

Fig. 1. A schematic illustration of nitride pellet fabrication procedures.

Table 2. Chemical composition of simulated spent fuel

Element	Surrogates	wt.%
Sr	SrO	0.053
Y	Y_2O_3	0.035
Zr	ZrO_2	0.284
Mo	MoO_3	0.253
Tc	RuO_2	0.059
Ru	RuO_2	0.166
Rh	Rh_2O_3	0.032
Pd	PdO	0.109
Ba	$BaCO_3$	0.146
La	La_2O_3	0.094
Ce	CeO_2	0.183
Pr	Nd_2O_3	0.086
Nd	Nd_2O_3	0.310
Sm	Nd_2O_3	0.068
U	UO_2	97.255
Np	CeO_2	0.035
Pu	CeO_2	0.722
Am	La_2O_3	0.071

어려운 원소들을 유사한 특성을 가진 원소들로 대체하여 표 2와 같은 비율로 분말을 혼합하였다. 여러 산화물 원소들의 균질한 혼합을 위해 attritor에서 메탄올을 용매로 하고 알루미나 볼을 사용하는 습식 밀링을 200 rpm의 임펠러 회전 속도로 2시간 동안 수행한 후 40°C로 유지되는 오븐에서 약 5일간 건조하였다. 건조된 분말은 turbular mixer에서 4시간 혼합한 후 윤활제로 0.2 wt%의 Zn stearate 분말을 첨가한 후 다시 30분간 혼합하였다. 혼합된 분말은 100 MPa의 압력을 가하여 직경 10 mm의 압분체 디스크로 성형하고 1700-1750°C에서 4시간 동안 수소분위기에서 소결되었다. 이때 대부분의 핵분열 생성물에 해당하는 첨가 원소 분말은 이산화우라늄(UO_2)과 고용체를 형성하게 되어 사용후 핵연료를 모사하는 소결체가 형성되게 된다[17].

모의 사용후 핵연료 소결체를 분말화하기 위해 산화 및 환원 열처리를 3회 반복하였다. 산화 열처리는 450°C 공기분위기에서 2시간 수행하였고, 환원 열처리는 700°C에서 Ar-4%H_2 분위기에서 7시간 수행하였다. UO_2를 U_3O_8으로 변화시키는 산화 열처리와 U_3O_8을 다시 UO_2로 변화시키는 환원 열처리를 반복하게 되면 두 상간의 밀도 차이로 인한 응력으로 인해 소결체가 분쇄되어 분말화되게 된다[18]. 탄소/우라늄 몰 비율을 2.2-2.5가 되도록 모의 사용후 핵연료 분말과 흑연 분말을 turbular mixer에서 혼합한 후 100 MPa의 압력을 가하여 평균 직경 13.2 mm, 두께 약 3-4 mm의 얇은 디스크 형태로 압분체를 성형하였다. 그림 2는 모의 사용후 핵연료 산화물 분말을 질화물 소결체로 전환하기 위한 열처리 온도 및 분위기 단계를 보여주고 있다. 질화 반응을 위한 열

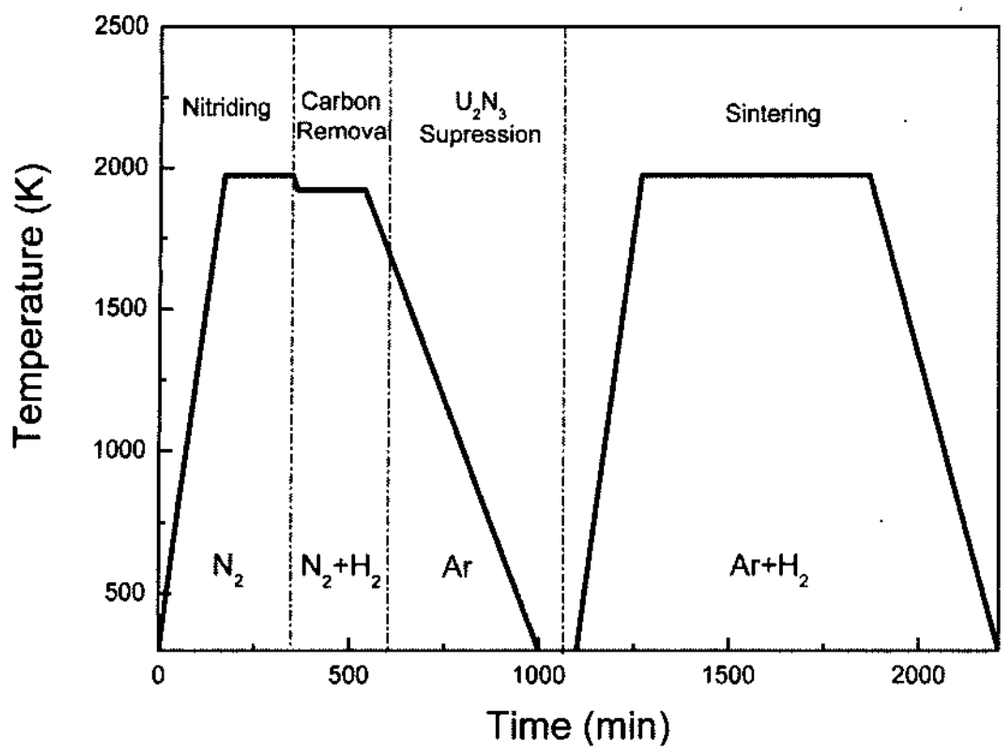

Fig. 2. Thermal cycles of nitride pellet fabrication procedures.

처리는 2단계로 수행하였으며 1단계에서는 질소 가스를 1 liter/min의 유속으로 흘려주며 1700°C에서 3시간 열처리를 수행하였으며 2단계에서는 질소가스와 함께 Ar-4%H_2 가스를 함께 흘려주며 1650°C에서 3시간 열처리 하여 잔류 탄소를 제거하고자 하였다. 또한 냉각 시 U_2N_3 형성을 억제하기 위해 1400°C 미만의 온도에서는 분위기 기체를 Ar으로 전환하였다. 또한 이와는 별도로 모의 사용후 핵연료의 질화 반응 기구를 분석하기 위하여 열중량분석기(Thermo-Cahn TGA)를 이용하여 열중량 분석을 수행하였다. 전환된 질화물의 결정구조를 분석하기 위해 X선 회절(XRD) 분석을 수행하였으며 질화 반응 전후의 조성 변화를 분석하기 위해 화학 성분 분석을 수행하였다. 체조된 질화물 분말을 다시 압분한 후 1700°C에서 10시간동안 수소 분위기로 소결한 후 밀도를 측정하고 미세조직을 관찰하였다. 또한 소결체의 열전도도를 분석하기 위해 상온에서 100°C의 온도범위에서 레이저 섬광 열분석기(Netzsch LFA-427)를 이용하여 열확산도를 측정하고 시차주사열량계(Netzsch DSC 404C)를 이용하여 비열을 측정하였다.

3. 결과 및 토의

환원 질화 반응 여부를 확인하기 위해 먼저 핵분열원소가 들어가지 않은 UO_2를 이용한 환원 질화 반응 시험을 수행하였다. 표 3에 정리된 결과와 같이 산화물에서 환원 질화 반응에 의해 변환된 질화물은 압분체의 형상이 약 18% 정도 수축된 형상으로 유지되고 있었으며 반응 전후의 질량을 비교한 결과 약 0.83의 변화율로 질량이 감소하였다. 이는 이산화우라늄(UO_2)이 질화우라늄(UN)으로 변환될 때의 이론적 질량변화율인 0.85와 유사한 값으로 판단된다. 핵분열생성물이 첨가되었을 경우의 정량적인 무게 변화는 열중량분석기를 이용하여 분석하였다. 수침법으로 측정된 질화 우라늄 전환체의 상대 밀도는 약 53%로 측정되었다.

Table 3. Nitride pellet data before and after carbothermic reduction treatment

Shrinkage	compact diameter	nitride diameter	shrinkage (%)
	13.20 mm	10.81 mm	18 %
Weight	before reaction	after reaction	change ratio
	11.11 g	9.27 g	0.83

환원 질화처리된 분말의 결정구조를 분석하기 위해 X선 회절 분석을 수행한 결과 냉각 시 1400°C

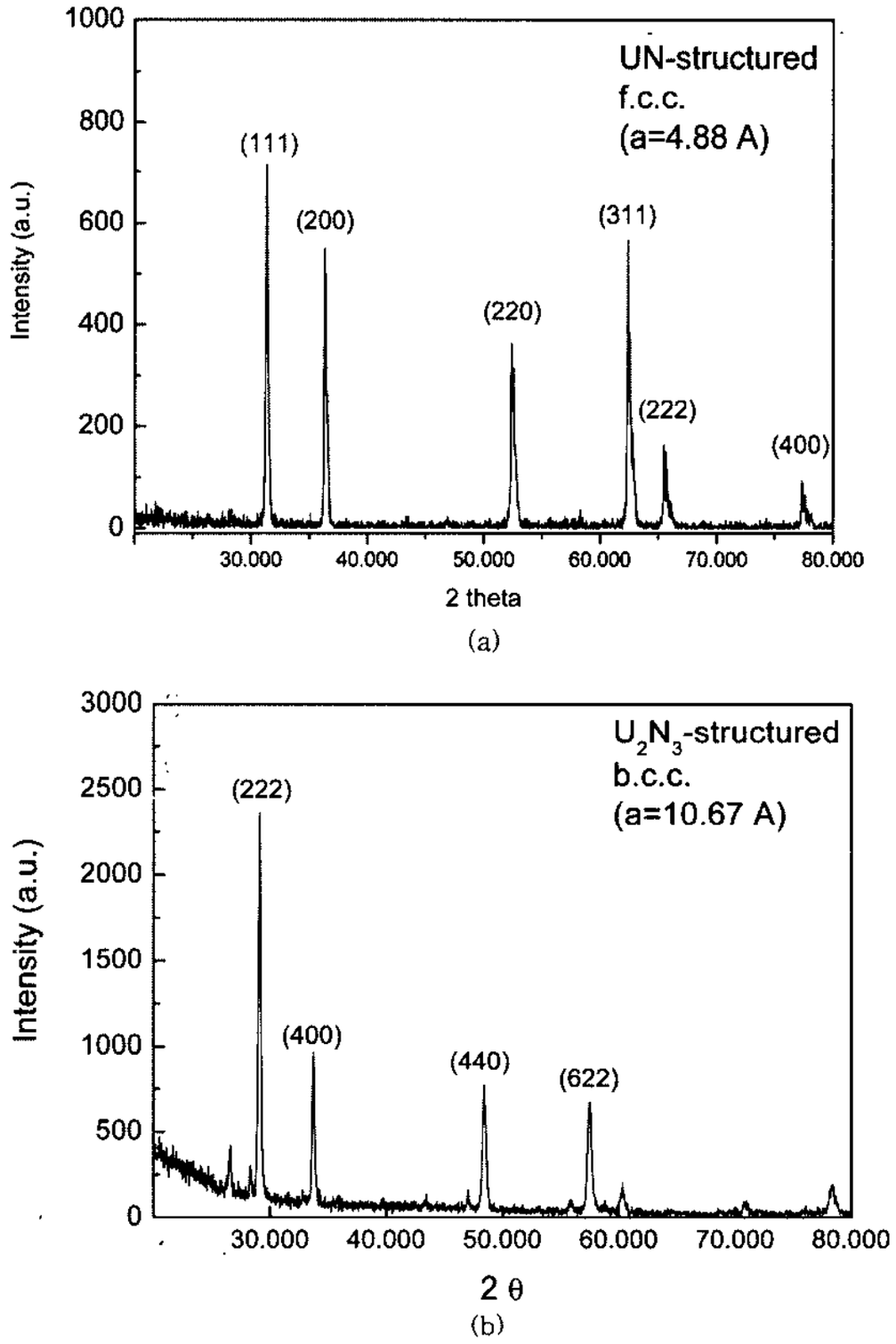

Fig. 3. XRD diffraction patterns of nitrided powders; (a) UN structure and (b)U_2N_3 structure.

Table 4. Carbon content in nitride fuel after a carbothermic reduction

Initial carbon/UO_2 ratio	2.2	2.35	2.5
Residual carbon content	0.854 wt%	1.661 wt%	2.037 wt%

이하의 온도에서 Ar 분위기로 치환한 시편은 그림 3(a) 에 나타난 결과와 같이 환원 질화 반응에 의해 UO_2 분말이 UN 상으로 변화된 것을 알 수 있었다. 그러나 냉각할 때 질소분위기를 계속 유지한 시편은 그림 3(b)와 같이 U_2N_3 상의 회절 도형을 나타내었다. 1400°C 이하의 온도에서 f.c.c. 구조의 UN이 질소 분위기에 있게 되면 밀도 11.3 g/cm^{3}의 b.c.c. 구조인 U_2N_3 으로 변화되게 된다.

초기 탄소 첨가 비율이 잔류 탄소량에 미치는 영향을 분석하기 위하여 탄소/우라늄의 몰비를 2.2, 2.35, 2.5로 변화시키면서 환원 질화반응을 수행한 결과, 표 4에 정리된 결과와 같이 잔류 탄소량은 초기 탄소 첨가 비율에 따라 비례하여 증가하는 경향을 보임을 알 수 있었다. 본 연구에서 잔류 탄소 함량을 줄이기 위해 선정된 열처리 시간은 잔류 탄소를 1000 ppm 미만으로 충분히 제거하기에 부족하였음을 알 수 있었다. Arai 등은 1550°C에서 Ar-8%H_2 분위기로 약 20시간의 잔류 탄소 제거 열처리를 하여야 잔류 탄소가 1000 ppm미만으로 제거된다고 보고하고 있다[12].

모의 사용후 핵연료(SIMFUEL)의 질화반응을 분석하기 위하여 열중량 분석을 수행하였다. 그림 4(a)와 같이 UO_2와 모의 사용후 핵연료의 고온 질화 환원 반응은 시간에 따라 유사한 기울기를 가지고 중량이 변화되는 거동을 보임을 알 수 있었다. 또한 UO_2의 경우 1500°C에서는 약 7시간 정도에서 반응이 완료되었으며 모의 사용후 핵연료의 경우 1500°C에서 9시간에 반응이 완료되는 거동을 나타내었다. 그림 4(b)는 UO_2와 모의 사용후 핵연료의 질량 변화를 비교한 그래프이다. 시간에 따른 모의 사용후 핵연료의 질량 변화 기울기가 UO_2의 질량 변화 기울기보다 적음을 알 수 있다. 이를 통하여 핵분열 생성물 원소들이 포함되어 있을 경우 질화 반응이 방해받는 것을 알 수 있었다. 사용후 핵연료의 산화 반응의 경우에도 핵분열 생성물의 함량이 많을수록 산화 반응 속도가 저하되는 것이 알려져 있다[19]. 따라서 핵분열 생성물 함량이 많은 고연소도 사용후 핵연료를 이용

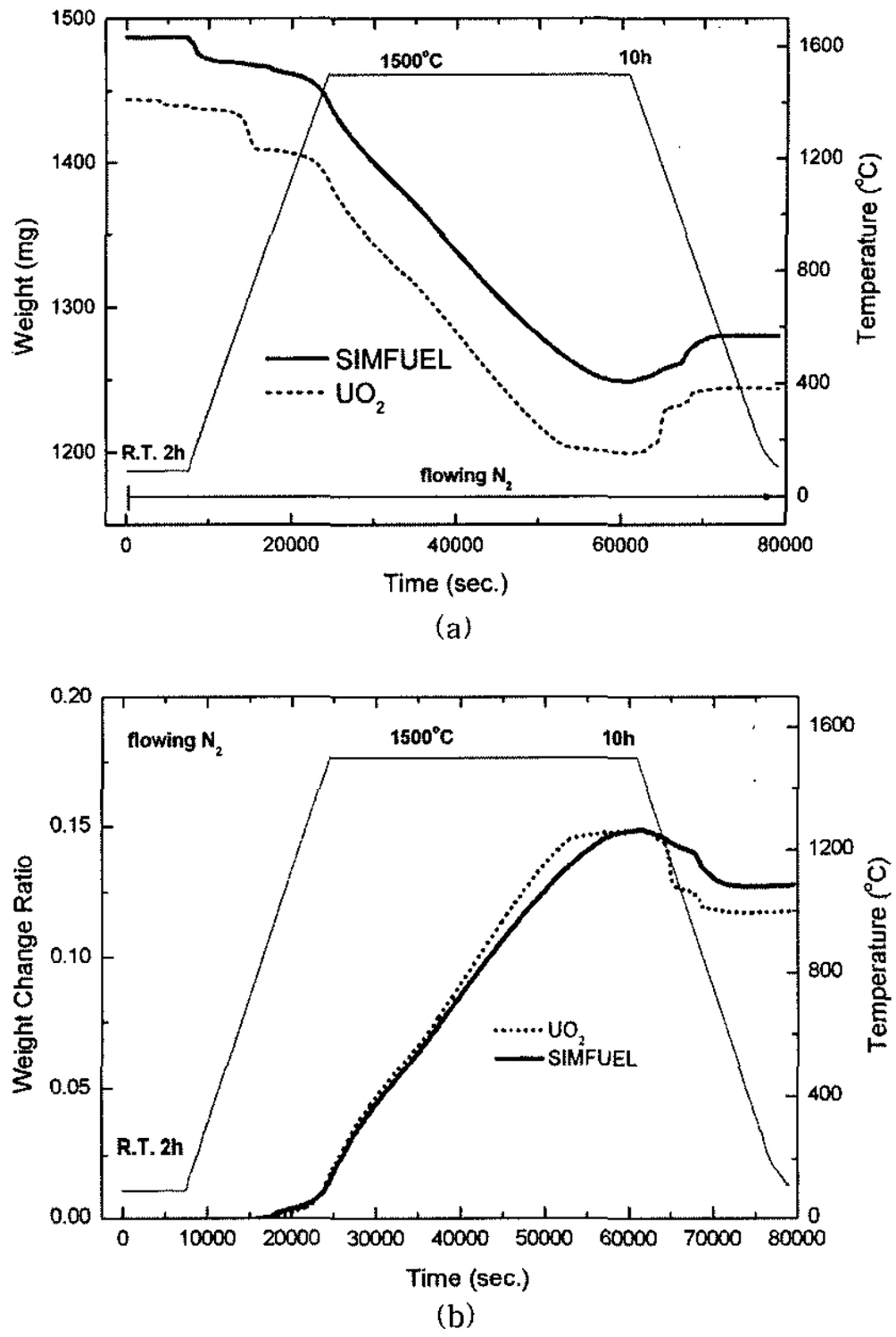

Fig. 4. Thermogravimetry results of carbothermic reductions of UO_2 and SIMFUEL.

할 경우 저연소도 사용후 핵연료를 이용할 때보다 더 긴 질화반응 시간이 필요할 것임을 예측할 수 있다. 열중량 분석 시험에서 온도가 감소할 경우 UO_2와 모위 사용후 핵연료는 유사하게 중량이 다시 증가하는 거동을 나타내었는데 실험 후 각 분말의 XRD 분석을 통해 U_2N_3 상이 형성되었음을 알 수 있었고 무게 증가의 원인을 규명할 수 있었다.

사용후 핵연료를 재활용하는 핵연료 주기 기술에 있어서 중요한 관심사는 중성자 경제성을 저감시키는 핵분열 생성물을 얼마나 효과적으로 분리할 수 있는가 하는 것이다. 소량이지만 고방사성과 붕괴열의 원인이 되는 핵분열 생성물들을 분리할 수 있다면 사용후 핵연료 관리 측면에서 유용할 것으로 판단된다. 재활용 핵연료 중에서 DUPIC(Direct Use of Spent PWR Fuel In CANDU Reactors) 핵연료라고 불리우는 재가공 핵연료는 경수로에서 방출된 사용후 핵연료에 남아있는 핵분열성 물질(U-235, Pu-239)을 중수로에 재사용하고자 하는 핵연료이다[20]. DUPIC

Table 5. Chemical analysis result for Ba and Sr in nitride fuel

Elements Specimen	Ba	Sr
SIMFUEL	1080 ± 40 ppm	418 ± 20 ppm
Nitride	< 5 ppm	< 5 ppm

핵연료는 플루토늄을 추출할 수 있는 습식 화학 재처리 공정을 거치지 않기 때문에 핵비확산성이 매우 우수하다. DUPIC 핵연료에서는 재소결하는 과정을 통해 산화물 상태에서 휘발성이 높은 Cs을 분리할 수 있다[21]. 사용후 핵연료를 재가공하여 질화물 핵연료로도 제조할 때 질화물 상태에서 휘발성이 높은 원소들을 추가로 분리할 수 있다면 고속로를 비롯한 미래형 원자로에서 활용할 수 있을 것으로 기대된다. 핵분열 생성물을 함유하는 질화물 중 Sr_3N_2과 Ba_3N_2 등이 휘발성이 높은 것으로 알려져 있다[22]. 본 연구에서는 질화 반응을 통하여 Ba, Sr 등이 휘발을 통해 분리될 수 있는지 분석하기 위하여 질화반응 전 모의 사용후 핵연료와 질화반응 후 질화물 시편의 Ba과 Sr의 함량을 화학분석을 통해 비교하였다. 표 5에 제시된 바와 같이 질화반응 전에는 1080 ppm, 418 ppm 이던 Ba과 Sr 함량이 질화반응 후에는 모두 5 ppm 미만으로 제거된 것을 알 수 있다. 사용후 핵연료 내에서 Ba과 Sr은 붕괴열이 높은 핵종으로 알려져 있으므로 휘발 공정으로 통해 분리하여 관리한다면 나머지 사용후 핵연료의 저장 및 처분에 유리할 것으로 기대되며, 실제 사용후 핵연료를 이용한 질화물 핵연료의 취급이 보다 용이해질 것으로 기대된다.

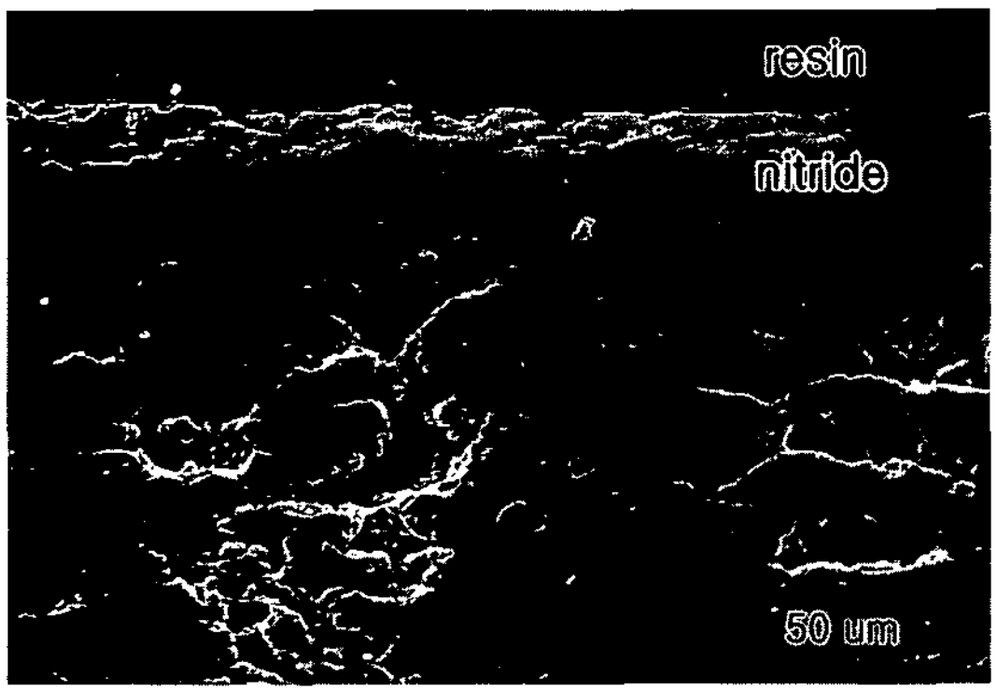

Fig. 5. A microstructure of a sintered nitride pellet fabricated by using SIMFUEL.

모의 사용후 핵연료를 이용하여 제조한 질화물 분말을 막자사발에서 분쇄한 후 300 MPa로 압분하여 $Ar+H_2$ 분위기로 1700°C에서 10시간 동안 소결한 소결체의 밀도를 수침법으로 5회 측정한 결과 약 8.22 g/cm^{3}에서 10.92 g/cm^{3}의 범위에 산포되어 있었다. 이는 질화물 분말의 밀링 및 소결 조건이 최적화되지 않은 원인에 기인한 것으로 판단된다. 모의 사용후 핵연료를 이용하여 제조된 질화물은 많은 종류의 첨가 원소들이 고용체 및 석출물을 형성하게 되어 정확한 이론 밀도를 구하기가 어려운 실정이다. 27,300 MWd/tU의 연소도에 해당하는 산화물 모의 사용후 핵연료의 경우 순수 UO_2에 비해 약 98.9% 수준으로 이론밀도가 약간 감소하는 것으로 알려져 있다[23]. 이를 감안하면 질화물도 유사한 이론밀도의 감소가 나타날 것으로 판단된다. 이론밀도의 77% 수준

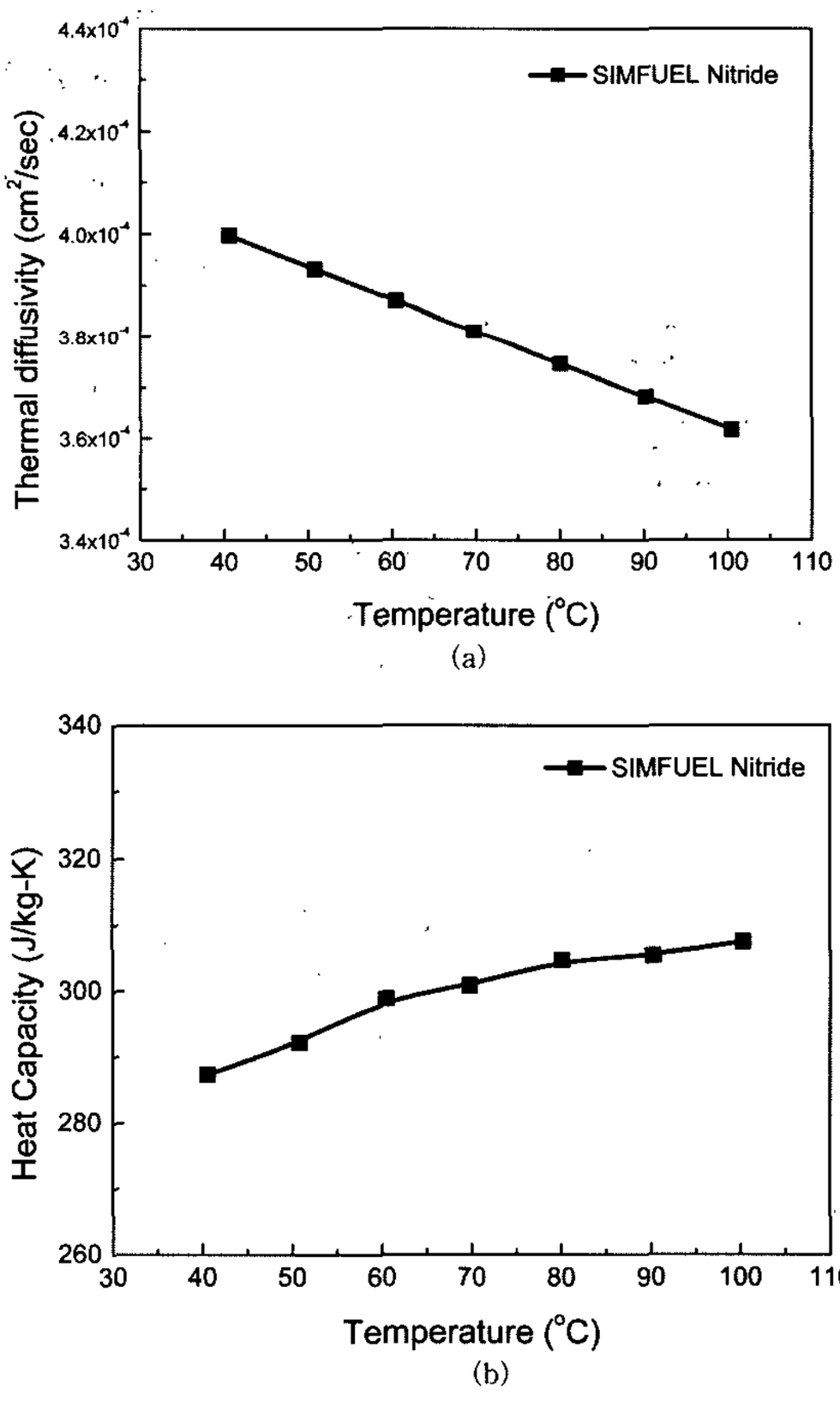

Fig. 6. Measurement results of (a) the thermal diffusivity and (b) the heat capacity of a nitride pellet made by using SIMFUEL.

상대밀도를 갖도록 제조된 질화물 소결체의 미세조직을 주사 전자 현미경으로 관찰한 결과 내부에 기공이 존재하고 있었으며 표면 부분이 내부 부분에 비해 상대적으로 더 치밀화된 것을 알 수 있었다. 고속로용 핵연료로서 피복관과 기계적인 상호작용을 완화하기 위해 권장되는 밀도는 약 75-80%이다. 만일 질화물 소결체에 대하여 더 높은 상대밀도가 필요하다면 밀링 시간, 소결온도, 소결 시간 등의 조절을 통해 달성 가능할 것으로 판단된다.

모의 사용후 핵연료를 이용하여 제조된 질화물 소결체의 열전도도를 측정하기 위하여 열확산도와 비열을 측정하였다. 열확산도는 레이저 섬광법으로 측정하였으며 비열은 시차주사열분석기로 측정하였다. 열확산도를 측정하기 위해서 질화물 소결체를 직경 8.3 mm, 두께를 1.5 mm로 가공하였으며 열확산도 및 열용량은 Ar 분위기에서 상온에서 100°C까지 측정하였다. 그림 6(a)는 질화물 소결체의 열확산도 측정 결과를 보여주고 있으며 그림 6(b)는 비열 측정결과를 보여주고 있다. 열전도도(λ)는 아래 식 (2)을 이용하여 계산하였다[24].

$$\lambda = \alpha c_p \rho \tag{2}$$

여기서, α는 열확산도, c_p는 열용량, 그리고 ρ는 밀도이다.

본 연구에서 측정된 질화물 소결체의 열전도도와 타 연구자의 산화물 및 질화물에 대한 열전도도 자료를 비교하여 그림 7에 나타내었다[23,25]. 본 연구에서 측정된 밀도값의 분포를 고려하여 식(2)를 통해 계산된 열전도도의 범위를 함께 도시하였다. 모의 사용후 핵연료를 이용하여 제조된 질화물 소결체의 열전도도는 순수한 UN보다는 다소 낮았다. 그러나 산화물인 UO_2 및 모의 사용후 핵연료의 열전도도 보다는 높았다. UO_2와 모의 사용후 핵연료의 열전도도 차이에서 나타나듯이 핵분열 생성물이 첨가될 경우 열전도도의 감소가 나타나게 된다. 이는 UO_2 기지에 핵분열 생성물 원소들이 고용될수록 열전도를 방해하기 때문인 것으로 알려져 있다[23]. 따라서 질화물의 경우에도 핵분열 생성물 원소들의 고용으로 인하여 열전도도의 감소가 나타날 것으로 판단된다.

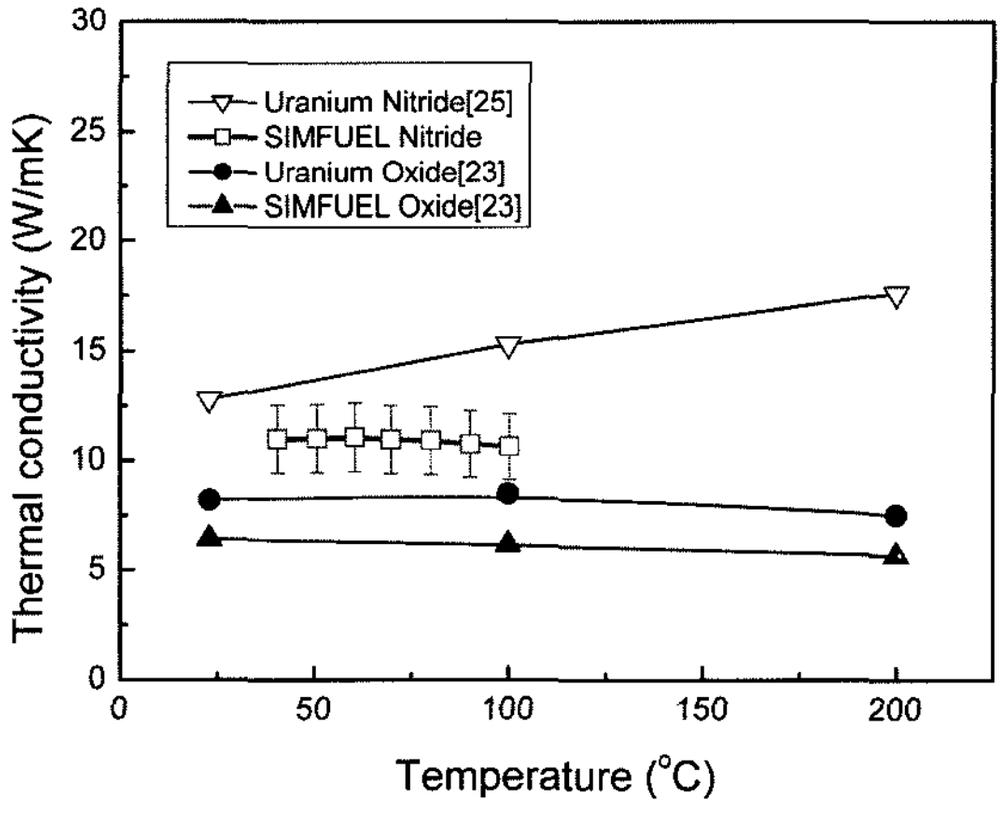

Fig. 7. Thermal conductivities of a nitride pellet fabricated by using SIMFUEL.

향후 사용후 핵연료를 이용한 질화물 건식 재가공 기술이 확립되면 소듐냉각고속로, 납냉각고속로, 가스냉각고속로 등 제 4세대 고속로를 비롯한 미래형 원자로에서 고연소도 달성 후 질화물 핵연료의 건식 재가공을 통해 핵분열 기체 등 일부 핵분열생성물(F.P.)를 건식 제거한 후 노화된 피복관을 교체하여 다시 연소하는 재순환 핵주기 개발의 기초가 확보될 것이 기대된다. 질화물 핵연료는 C-14과 같은 방사성 폐기물 저감을 위해 N-15로 농축된 질소를 사용해야 하므로 재가공 시 N-15를 효율적으로 회수하는 방안을 확립하는 것이 필요할 것이다. 또한 마이너액티나이드가 첨가된 핵연료의 경우 소결 시 Am 등의 마이너악티나이드 원소가 증발하여 손실될 가능성이 있으므로 이에 대한 대책을 확립해야 한다. N-15의 경제적 농축 및 회수 방안과 제조 시 마이너액티나이드 원소들의 손실 억제 방안에 대한 연구가 진행되고, 질화물 핵연료의 열적 기계적 특성과 조사 시험 결과가 충분히 축적된다면 질화물 핵연료는 유망한 미래형 핵연료로서 실용화될 수 있을 것으로 판단된다.

4. 결 론

핵분열생성물 원소들을 포함하고 있는 모의 사용후 핵연료를 이용하여 고온 환원 질화 공정을 수행한 결과 핵분열 생성물을 포함한 질화물 소결체를 제조할 수 있었다. 핵분열 생성물 첨가에 따른 질화 반응 속도를 비교한 결과 산화 우라늄보다 모의 사용후 핵연료의 질화반응 속도가 감소되는 것을 알 수 있었다. 또한 질화반응 전후의 핵분열 생성물 원소의

농도를 측정한 결과 Ba, Sr 등 질화물 상에서 휘발성이 높은 원소들이 제거됨을 알 수 있었다. 제조된 건식 재가공 질화물의 열전도도를 측정한 결과 순수 질화 우라늄보다는 열전도도가 낮았으나 재가공 산화물 핵연료의 열전도도 보다는 높은 열전도도를 나타내었다.

감사의 글

본 연구는 한국원자력연구원 자체연구사업의 지원으로 수행되었음.

참고문헌

[1] L. C. Walters, D. L. Porter and D. C. Crawford: Prog. Nucl. Energy, **40** (2002) 513.
[2] D. C. Crawford, D. L. Porter and S. L. Hayes: J. Nucl. Mater., **371** (2007) 202.
[3] K. Minato, M. Akabori, M. Takano, Y. Arai, K. Nakajima, A. Itoh and T. Ogawa: J. Nucl. Mater., **320** (2003) 18.
[4] Y. Arai and K. Minato: J. Nucl. Mater., **344** (2005) 180.
[5] H. Takano and K. Nishihara: Prog. Nucl. Energy, **40** (2002) 473.
[6] N. Hadibi-Olschewski, J.-P. Glatz, H. Bokelund and M. J.-F. Leroy: J. Nucl. Mater., **188** (1992) 244.
[7] US DOE: Report to Congress on the Advanced Fuel Cycle Initiative, 2003.
[8] US DOE: A Technology Roadmap for Generation IV Nuclear Energy Systems, 2002.
[9] US DOE: Global Nuclear Energy Partnership, www.gnep.energy.gov.
[10] B. A. Hilton, D. L. Porter and S. L. Hayes: ANS meeting on Nuclear Fuels and Structural Materials for the Next Generation Reactors, Reno, NV, 4–8 June 2006.
[11] T. Muromura and H. Tagawa: J. Nucl. Mater., **71** (1977) 65.
[12] Y. Arai, S. Fukushima, K. Shiozawa and M. Handa: J. Nucl. Mater., **168** (1989) 280.
[13] C. Ganguly, P. V. Hegde and A. K. Sengupta: J. Nucl. Mater., **178** (1991) 234.
[14] D. D. Sood, R. Agarwal and V. Venugopal: J. Nucl. Mater., **247** (1997) 293.
[15] Hj. Matzke: Science of advanced LMFBR fuels, North Holland, Amsterdam (1986).
[16] H. Blank: Materials Science Technology, B. R. T. Frost (Ed.), Nuclear Materials, Ch.4. Nonoxide ceramic nuclear fuels, **10A**, VCH, Weinheim (1994).
[17] J. W. Lee, W. K. Kim, J. W. Lee, G. I. Park, M. S. Yang and K. C Song: J. Nucl. Sci. Technol., **44** (2007) 597.
[18] H. J. Ryu, K. C. Song, G. I. Park, J. W. Lee and M. S. Yang: J. Phys. Chem. Solids, **66** (2005) 671.
[19] K. H. Kang, S. H. Na, K. C. Song, S. H. Lee and S. W. Kim: Thermochim. Acta, **455** (2007) 129.
[20] M. S. Yang, K. C. Song and S. W. Park: J. Nucl. Mater., In Press (2008).
[21] J. M. Shin and J. J. Park: Korean J. Chem. Eng., **18** (2001) 1010.
[22] R. Thetford and M. Mignanelli: J. Nucl. Mater., **320** (2003) 44.
[23] P. G. Lucuta, Hj. Matzke and R. A. Verrall: J. Nucl. Mater., **217** (1994) 279.
[24] M. Sheindlin, D. Halton, M. Musella and C. Ronchi: Rev. Sci. Instrum., **69** (1998) 1426.
[25] Y. Aral, K. Nakajima and Y. Suzuki: J. Alloys Compd., **271-273** (1998) 602.