

모의 DUPIC분말의 특성 및 소결성 (Characteristics and Sinterability of Simulated DUPIC Powder)

한국원자력연구소 이재원*, 김종호, 김용기, 박근일, 이정원

1. 서론

DUPIC(Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactor)은 사용후 경수로 (PWR : Pressurized Water Reactor) 핵연료를 건식공정으로 가공하여 중수로(CANDU : Canadian Deuterium Uranium) 핵연료로 재사용 하는 기술이다[1,2]. DUPIC핵연료 펠렛을 제조하기 위한 원료분말의 제조는 OREOX (oxidation and reduction of oxide fuels) 공정에 의해 수행되고 있다. 산화공정에 의해서 UO_2 가 산화되어 U_3O_8 으로 변하며 이때 상변태에 의해 약 32%의 부피팽창이 일어나게 되어 펠렛(또는 분말)이 깨어지거나 균열이 형성된다. 그 다음에 환원공정에 의해서 U_3O_8 에서 UO_2 로 환원될 때 수축이 일어나는데 이때 생기는 압축응력에 의해서 분말이 깨어지거나 균열이 형성된다. 이와 같은 OREOX공정을 반복하면 큰 입자들은 작은 입자들로 변하면서 다양한 입자형태를 가지며, 분말의 비표면적 또한 증가되어 소결에 더욱 적합한 분말이 생성된다. 그러나, OREOX 처리만으로는 DUPIC 소결체 제조시 요구되는 소결성을 얻을 수 없어 분쇄공정을 통해 미세 분말화한 후 사용하고 있다.

본 연구에서는 반복적인 OREOX처리분말 특성이 후 공정인 밀링에 의해서 생성되는 분말특성에 미치는 영향 및 소결성을 35,000MWD/MTU 연소조건인 모의 사용후핵연료를 사용하여 조사하였다.

2. 실험방법

모의 사용후핵연료는 가압경수로에서 35,000MWD/MTU 연소도와 냉각시간이 15년인 경우의 사용후핵연료를 모사하여 ORIGEN-2 코드로 기체상을 제외한 핵분열생성물의 양을 결정하고, 모의 핵분열 생성물을 산화물 상태로 UO_2 분말(ADU, 평균입도 : 2.91 μm)에 첨가하여 일련의 핵연료 제조공정인 분쇄, 혼합, 성형, 소결 단계를 거쳐 제조하였다. 이때 소결체의 소결 밀도는 10.23g/cm³, 결정립 크기는 7.1 μm 이었으며 이를 본 실험에 사용하였다.

OREOX처리실험은 4회까지 반복하였으며 모의 사용후핵연료 소결체 250g을 각각 이용하여 수행하였다. OREOX처리조건은 산화는 450°C, 공기 3 L/min 유량으로 3시간, 환원은 700°C, Ar/4% H_2 가스 3L/min 유량으로 5시간, 승온 및 감온시는 Ar 가스 1L/min 유량으로 하였으며 각 OREOX처리 최종단계에서는 안정화 Ar/2% O_2 가스 2L/min 유량으로 4시간동안 처리를 하였다. OREOX 처리를 거친 분말은 attrition mill을 사용하여 150rpm으로 15분에서 120분까지 분쇄하였다. 분쇄에는 직경 5mm의 zirconia 볼을 사용하였으며 볼/OREOX처리분말의 무게비는 40으로 하였다. OREOX처리분말 및 분쇄 분말의 입자크기는 laser particle size analyzer로, 비표면적은 BET법을 이용하여 측정하였다. 또한 분말의 미세 조직은 주사전자현미경(SEM)을 이용하여 분석하였다. 분쇄한 분말은 일축의 유압 압축기로 300MPa의 압력을 가하여 압분하여 밀도를 측정한 후 원통형 전기로에 넣고 Ar/4% H_2 분위기 하에서 3°C/min의 승온속도로 가열하여 최종 1700°C에서 6시간 동안 소결하였다. 제조된 소결체에 대하여 밀도를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

분말의 입자크기는 OREOX처리 반복횟수에 따라서 감소하였다가 4회 OREOX처리한 경

우에 다소 증가하였다(그림 1). 이는 SEM관찰에 의하면 입자가 환형 고리의 연결된 형태로 팽창되어 커진 것으로 보이며 겉보기 밀도의 감소에 의해서도 확인할 수 있었다. OREOX처리 분말의 형태와는 상관없이 고에너지 attrition 밀링에 의해 15분간 분쇄하여도 거의 1 μ m 이하의 미세한 분말로 분쇄됨을 알 수 있었다. OREOX처리 반복횟수가 많아지고 분쇄시간이 길어짐에 따라서 조밀한 agglomerate가 생성됨을 확인할 수 있었다. OREOX분말의 비표면적은 처리회수에 따라서 증가하였으며 분쇄시간에 따라서는 거의 선형적으로 증가함을 보였다. 그러나 모의 DUPIC 분말 비표면적은 분쇄보다 OREOX처리 반복횟수에 의해서 결정됨을 알 수 있었다.

압분체의 밀도는 OREOX처리 반복횟수에 따라 감소하는데 이는 분말의 비표면적 및 분말의 형태에 의해서 기인하는 것으로 생각된다. 분쇄분말에 의해서 압분체 밀도는 증가되나 OREOX처리 반복횟수에 의해 지배됨을 보인다. 압력(100-350MPa)에 따른 분말의 압분성도 OREOX처리 반복횟수가 증가됨에 따라서 감소하게 된다. 1회 및 3회 OREOX처리분말의 분쇄분말을 소결한 후 밀도를 측정된 결과에 의하면 3회 OREOX처리 분쇄분말의 소결체 밀도는 10.37-10.40g/cm³(96.6-96.9% TD)정도로 거의 비슷하지만, 1회 OREOX처리 분쇄분말의 경우에는 분쇄시간에 따라서 10.01g/cm³(93.3% TD)에서 10.47g/cm³(97.6% TD)까지 증가하였다. OREOX처리 후 분쇄분말로 제조한 소결체의 결정립 크기는 모두 6 μ m 이상이며 분쇄시간에 따라 증가하였다. 1회 OREOX처리 후 60분 이상 분쇄한 분말의 소결체 결정립 크기가 8 μ m 이상이 되었으며, 3회 OREOX처리 후 60분 분쇄분말 소결체의 결정립 크기는 10.53 μ m로 가장 높은 값을 보였다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었음.

참고문헌

1. 양명승 등, "핵연료 제조 및 품질관리기술개발: 경·중수로 연계 핵연료주기 기술개발," KAERI/RR-1744/96(1996).
2. 양명승 등, "DUPIC 핵연료제조 및 공정기술개발: 경·중수로 연계 핵연료주기 기술개발," KAERI/RR-2022/99(1999).

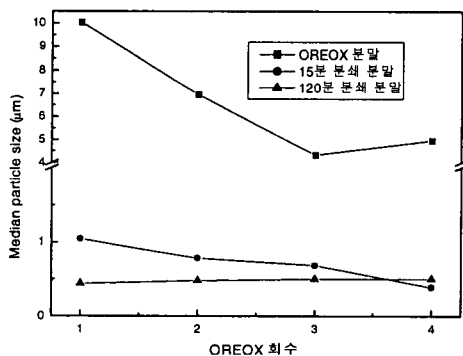


그림 2. OREOX횟수 및 분쇄시간에 따른 입자크기

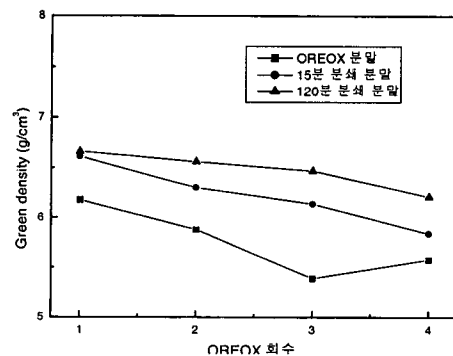


그림 1. OREOX횟수 및 분쇄시간에 따른 압분체 밀도