

모의 사용후 핵연료를 이용한 건식재가공 핵연료 분말 및 소결 특성 연구

이재원, 신원철, 김용기, 조광훈, 이정원
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

최근에는 경수로 핵연료의 연소도를 높이고 있으며 연소도가 증가함에 따라서 핵분열생성물(불순물)의 양은 증가하게 된다. 핵분열생성물의 함량은 산화속도 및 분말특성에 영향을 주는 것으로 알려져 있다. 소결성을 갖는 분말의 제조 및 특성 실험은 사용후 핵연료가 고방사능을 가져 실험수행상에 제한이 많아 실제 사용후 핵연료를 모사한 모의 사용후 핵연료를 사용하여 수행하고 있다. 본 연구에서는 연소도가 35,000 MWD/MTU 및 60,000 MWD/MTU인 모의 사용후 핵연료를 제조하여 연소도에 따른 산화·환원처리 분말 및 미분쇄 분말의 분말특성, 소결온도 및 성형압력에 따른 소결성을 조사하였다. 연소도의 증가에 따라서 분말의 평균 입자크기(그림 1)는 감소하며 비표면적(그림 2)은 증가하였다. UO_2 소결체에 고용되는 불순물중에 Nd, La 및 Y는 +3가, Sr은 +2가의 이온들이 있어 전하 균형(charge balance)을 유지하기 위해서 U^{4+} 의 일부가 U^{6+} 로 산화되며, 연소도가 증가함에 따라서 U^{6+} 이온의 함량이 커지게 된다. 산화시에 이들 불순물 원소의 이온가는 변하지 않기 때문에 전하균형을 유지하기 위해서 U_3O_8 로 완전히 산화되지 못하고 일부는 중간상인 U_4O_9 으로 남아있게 되므로, 연소도가 증가할수록 산화과정에 분말의 비표면적 증가율이 낮게 된다. XRD분석을 통해 불순물이 함유된 UO_2 에서는 U_4O_9 상의 생성을 확인할 수 있었다. 반면에 환원과정 중에 연소도가 높을수록 비표면적이 매우 크게 증가하였다. 연소도가 높을수록 환원과정 중에 U_3O_8 상이 입자표면으로부터 내부로 UO_2 상으로 변태됨에 따라서 부피수축에 의해 발생된 압축응력이 더욱 크기 때문에 U_3O_8 상이 더 많이 파쇄와 균열이 일어나 비표면적이 커진 것으로 생각된다. 연소도가 높을수록 산화·환원처리 분말 입자에 미세 기공들이 생성되어 있음을 알 수 있었다. 연속공정으로 3회 산화·환원처리 분말 및 미분쇄 분말의 분말특성은 표 1과 같으며, 미분쇄에 의해서 입자크기는 매우 작아지며, 비표면적 및 충전성은 크게 증가하였다. 연소도 60,000 MWD/MTU 미분쇄 분말의 비표면적은 천연 UO_2 (ADU분말)의 비표면적 5.27 m^2/g 보다 높았다. 따라서 미분쇄에 의해서 성형성 및 소결성이 매우 좋은 분말을 얻을 수 있었다. 성형압력의 증가에 따라 성형밀도는 증가하였으며(그림 3), ADU 분말과 비슷한 경향을 보였다. 연소도가 높은 분말의 성형밀도가 낮은 것은 비표면적이 클수록 분말 입자간의 마찰에 의해 압축에 대한 저항이 커지기 때문에 성형밀도는 감소하는 것으로 생각된다. 소결온도의 증가에 따라서 소결밀도는 거의 선형적으로 증가하였으며 연소도 35,000 MWD/MTU 분말의 소결밀도는 이론밀도의 96%에서 96.8%까지 증가하였으며, 연소도 60,000 MWD/MTU 분말은 98.0%에서 98.1%로 거의 증가하지 않았다. 본 실험범위 내에서 성형압력에 따라서 소결밀도는 증가하였으나 소결온도가 높아짐에 따라 소결밀도에 대한 성형압력의 영향은 적었다(그림 4). 그림 5는 연소도에 따른 결정립구조를 나타낸 것으로 연소도가 높은 경우 결정립크기가 작는데 이는 금속석출물 양이 증가하여 결정립 성장을 방해하기 때문인 것으로 생각된다.

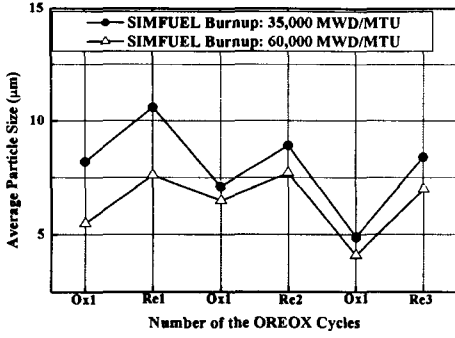


그림 1. 분말의 평균입자크기 변화

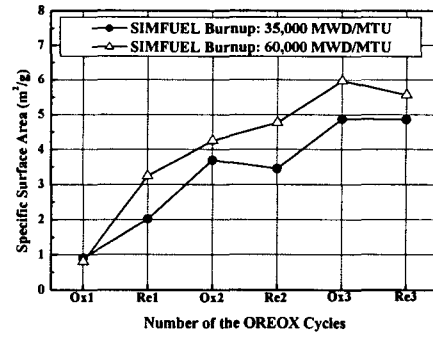


그림 2. 분말의 비표면적 변화

표 1. 연소도에 따른 산화·환원처리 분말 및 미분쇄 분말의 특성

분말 물성	35,000 MWD/MTU		60,000 MWD/MTU	
	밀링전	밀링후	밀링전	밀링후
평균입자크기 (μm)	7.6	0.6	7.0	0.7
비표면적 (m²/g)	4.55	4.99	4.82	5.88
겉보기 밀도 (g/cm³)	0.71(6.6%TD)	1.63(15.1%TD)	0.72(6.8%TD)	1.95(18.4%TD)
탭 밀도 (g/cm³)	1.87(17.3%TD)	3.05(28.3%TD)	1.83(17.2%TD)	3.12(29.3%TD)

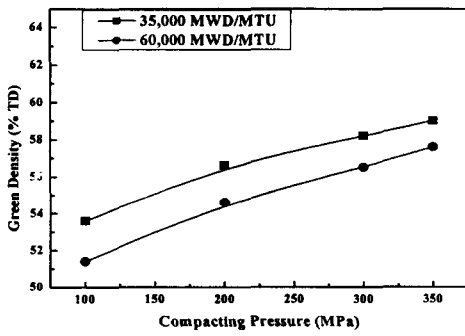


그림 3. 성형밀도 변화

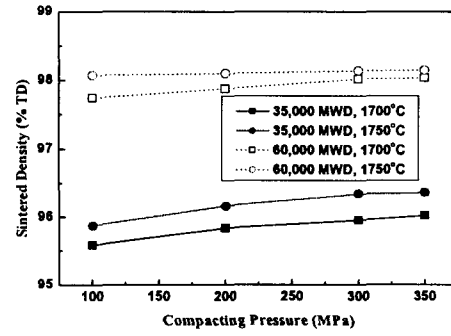
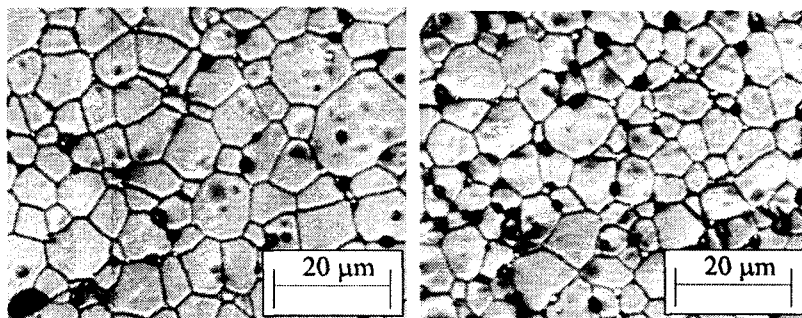


그림 4. 성형압력 및 소결온도에 따른 소결밀도



(a) 연소도 35,000 MWD/MTU, 소결밀도 : 96.9% TD

(b) 연소도 60,000 MWD/MTU, 소결밀도 : 98.1% TD

그림 5. 소결체의 결정립 구조