

## 모의 사용후핵연료를 이용한 질화물 핵연료 제조 공정

류호진, 이영우, 송기찬  
한국원자력연구소, hjryu@kaeri.re.kr

### 1. 서론

일부 국가들의 핵무기 개발 시도와 고준위 방사성폐기물 저장/처분 시설 확보의 난이도가 심화됨에 따라 핵비확산성과 장수명 핵종 저감능력이 강화된 미래형 핵연료 개발이 필요한 실정이다. 이에 비산화물 (질화물, 탄화물) 세라믹 핵연료는 금속 핵연료, 용융염 핵연료와 함께 미래형 핵연료 대상 재료로 활발히 연구되고 있다.

미국은 AFCI 프로그램의 2004 년 핵연료 관련 예산 1,500 만불을 질화물연료 20%, 금속연료 20%, 산화물연료 19%, TRISO 7%, 분산핵연료 7% 등으로 배정하여 질화물 핵연료의 중요성을 인식하고 있으며 Figure 1 과 같이 LANL 을 중심으로 조사시험용 질화물 핵연료 시편을 제조하고 있다[1]. 또한 일본도 JAERI 를 중심으로 "Double Strata" 핵주기를 제시하고 MA 함유 질화물 핵연료의 가공 및 건식 처리에 대한 기술을 지속적으로 축적하고 있다[2].

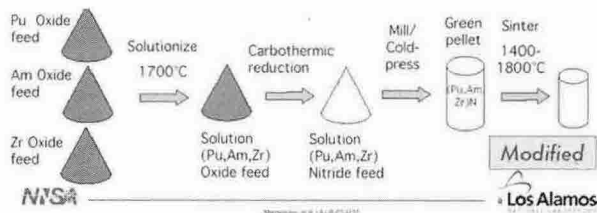


Figure 1. Fabrication process of MA containing nitride fuels in Los Alamos National Lab.

질화물 핵연료는 높은 중금속밀도 (13.5g/cm<sup>3</sup>), 높은 용점(2,800°C)과 산화물의 10 배인 높은 열전도도, 산화물의 1/2 인 증배시간, Na-bond 와 반응성이 없고 피복관과 양립성이 좋은 우수한 특성을 가지고 있다[3]. 그리하여 핵비확산성 GEN-IV 고속로용 핵연료, 마이너 액티나이드(MA) 연소를 위한 ADS 용 target 재료로 연구되고 있다[4].

그러나 질화물핵연료는 N-14 로부터 C-14 및 B-11 이 생성되어 재처리 및 중성자 경제성에 나쁜 영향을 주는 것으로 알려져 있어 N-15 농축이 필요하며, 산화되기 쉬워 취급이 어렵고 소결성이 나쁜 것으로 알려져 있다. 또한 사용후핵연료를 건식 재가공하여 질화물 핵연료를 제조할 경우 순수 질화물 핵연료

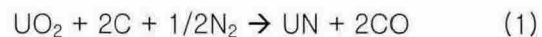
제조공정과는 달리 사용후핵연료 내에 함유되어 있는 TRU 원소를 비롯한 F.P. 존재의 영향을 받게 되므로 모의 사용후핵연료를 이용하여 F.P. 함유 질화물 분말 제조의 최적 조건을 확립하는 것이 필요하다.

사용후 질화물 핵연료를 이용한 질화물 건식 재가공 기술이 확립되면 SFR, LFR, GFR 등 GEN-IV 고속로를 비롯한 핵비확산성 미래형 원자로에서 고연소도 달성 후 사용후 질화물 핵연료의 건식 재가공을 통해 핵분열 기체 등 일부 F.P.를 건식 제거한 후 노화된 피복관을 교체하여 다시 연소하는 TRU 재순환 핵주기 개발의 기초가 확보될 것이 기대된다.

본 연구에서는 사용후핵연료를 이용한 질화물 핵연료 주기를 확립하기 위한 기초 연구의 일환으로 UO<sub>2</sub> 및 모의 사용후핵연료를 이용하여 질화물 핵연료를 제조하는 고온 환원 질화 공정을 시도하고 그 결과물로 제조된 질화물의 성분 및 미세조직을 분석하였다.

### 2. 실험 결과

본 연구에서 사용된 기본적인 고온 환원 질화 반응은 아래와 같은 반응식으로 표현될 수 있다[5].



UO<sub>2</sub> 분말과 함께 혼합되는 탄소 분말은 환원 반응을 완성하여 잔류 산소 양을 줄이기 위하여 통상적으로 과잉 첨가되며 그 몰 비는 약 2.2~2.5 범위이다. 탄소 분말과 혼합된 UO<sub>2</sub> 분말은 100 MPa 의 압력으로 압분체를 형성하였으며 본 연구에서 압분체의 평균 직경은 13.20 mm 였으며 두께는 약 3.3 mm 의 얇은 실린더 형태의 형상을 유지하였다.

고온 질화반응은 기체 분위기에 따라 3단계로 이루어지며 환원 질화 단계, 잔류탄소 제거단계, 불활성 냉각단계로 구분할 수 있다. 질화반응은 1700°C 이상의 온도에서 질소분위기를 흘려주며 수행되었고 잔류탄소 제거반응은 1600°C에서 질소에 수소를 4% 첨가한 기체를 흘려주어 탄화수소의 발생으로 잔류 탄소를 제거하고자 하였다. 불활성 냉각 단계에서는 1400~1500°C 이하에서 기체분위기를 알곤 분위기로 치환하였는데 이보다 낮은 온도에서 질소분위기 유지 시 U<sub>2</sub>N<sub>3</sub> 가 형성되기 쉽기 때문이다.

Figure 2는 환원 질화 반응에 의해 질화물로 변환된 압분체를 보여주고 있다. Table 1에 정리된 결과와 같이 제조된 질화물은 압분체의 형상이 약 18% 정도 수축된 형상으로 유지되고 있었으며 반응 전후의 질량을 비교한 결과 약 0.83의 변화율로 질량이 감소하였다. 이는 이론적인 질량변화율인 0.85와 유사한 값으로 판단된다. 반응 후의 상대 밀도는 약 52.5%로서 직접 핵연료로 사용하기에는 부족한 실정이다. 따라서 기존 연구와 마찬가지로 제조된 질화물을 분쇄한 후 다시 압분하여 소결하는 공정이 필요한 것으로 판단된다.



Figure 2. Nitride pellets after carbothermic reduction treatment.

Table 1. Nitride pellet data before and after carbothermic reduction treatment.

|          |                        |                         |        |
|----------|------------------------|-------------------------|--------|
| 수축<br>관련 | 압분체직경                  | 질화물직경                   | 수축률    |
|          | 13.20 mm               | 10.81 mm                | 18 %   |
| 무게<br>관련 | 반응전무게                  | 반응후무게                   | 변화율    |
|          | 11.11 g                | 9.27 g                  | 0.83   |
| 밀도<br>관련 | 반응후밀도                  | 이론밀도                    | 상대밀도   |
|          | 7.51 g/cm <sup>3</sup> | 14.32 g/cm <sup>3</sup> | 52.5 % |

초기 탄소 첨가 비율이 잔류 탄소량에 미치는 영향을 분석하기 위하여 탄소/우라늄의 몰비를 2.2 ~ 2.5 까지 변화시키면서 동시에 환원 질화 반응을 수행한 결과 Table 2에 정리된 결과와 같이 잔류 탄소량은 초기 탄소 첨가 비율에 따라 비례하여 증가하는 경향을 보임을 알 수 있었다. 탄소 첨가 비율과 잔류 탄소 제거 처리의 최적화를 위하여 잔류 산소량의 변화에 대한 추가적인 연구가 필요한 것으로 판단된다.

Table 2. Carbon content in nitride pellets after carbothermic reduction with initial carbon.

|                                      |           |           |           |
|--------------------------------------|-----------|-----------|-----------|
| Initial carbon/UF <sub>6</sub> ratio | 2.2       | 2.35      | 2.5       |
| Residual carbon content              | 0.854 wt% | 1.661 wt% | 2.037 wt% |

### 3. 결론

산화 우라늄 및 모의 핵연료를 이용하여 환원 질화 공정을 수행한 결과, 질화물의 변환이 가능하였다. 변환된 질화물 소결체는 52.5%의 낮은 상대밀도를 나타내었으며 초기 탄소 첨가 비율은 잔류 탄소량이 비례하여 증가하는 영향을 나타내었다. 환원 질화 공정에 영향을 미치는 반응 온도 및 유지시간, 기체 분위기, 탄소 첨가 비율 등 주요 변수에 대한 최적화 연구가 필요한 실정이다.

### 감사의 글

이 연구는 한국원자력연구소 자체연구개발사업의 지원으로 수행되었음.

### 참고문헌

- [1] B. Margevicius, AFCI Technical Review Presentations, Aug. 27-28, 2003.
- [2] T. Mukaiyama et al., "Partitioning and Transmutation Program "OMEGA" at Japan", Global '95, pp.110 (1995).
- [3] H.J. Matzke, in P.Vincenzini ed. "Ceramic Today - Tomorrow's Ceramics", Elsevier Science Publishers, pp. 2961 (1991).
- [4] C.McPheeters et al., "Pyrochemical Process for LWR Spent Fuel, OECD/NEA Meeting, Int. Information Exchange Program on Actinide and Fission Product Separation and Transmutation, ANL, Nov. 11-13, 1992 (1992)
- [5] Y. Arai et al. J. Nucl. Mater. 185, pp. 159 (1991).