

## 열처리분위기가 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말 성형체의 소결거동에 미치는 영향

이계원, 김영환, 조광훈, 박근일, 이한수

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

njwlee@kaeri.re.kr

### 1. 서론

사용후핵연료를 산화하여 얻은 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말을 출발 물질로 하여 재가공하여 제조할 수 있는 전해환원용 원료물질로는 그래놀, 다공성 펠렛 및 판상 펠렛이 있다. 원료물질의 제조 용이성 및 기계적 물성을 고려하면 다공성 펠렛이 우수하며 전해환원 효율성도 입증되었다[1,2].

회분식으로 운전되는 전해환원공정의 처리용량을 증가시키기 위해서는 펠렛의 밀도를 높일 수 있는 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 성형체의 열처리조건이 필요하다. 또한 전해환원공정에서 Pt 양극의 수명을 증대시키고, 전해환원공정에서 발생하는 염폐기물의 격막 결정화에 의한 염의 재생 및 재활용을 위해서 Cs과 I 등을 휘발제거 할 수 있는 열처리조건이 요구된다. 우라늄산화물(UO<sub>2-x</sub>, 0 ≤ x ≤ 2.667) 결정립내의 핵종의 확산도는 과잉 화학양론비(x)가 클수록 증가되는 것으로 알려져 있다[3]. 핵종을 휘발제거율을 증대시키기 위한 열처리분위기로는 1500°C 평형상태에서 x=0.1로 유지되는 0.001%H<sub>2</sub>-Ar 가스가 적합한 것으로 분석되었다.

따라서, 본 연구에서는 다공성 펠렛을 제조하기 위해 Ar분위기에서 핵종휘발율을 높이고 4%H<sub>2</sub>-Ar 분위기에서 UO<sub>2-x</sub>를 UO<sub>2</sub>로 환원처리 할 수 있는 사용후핵연료 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 성형체의 열처리공정조건을 미조사 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 성형체를 이용한 실험을 통해 평가하였다.

### 2. 실험

실험에는 사용된 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말은 rotary voloxidizer를 이용하여 CANDU형 펠렛을 500°C에서 5시간동안 산화하여 얻은 것으로 비표면적은 0.65 m<sup>2</sup>/g, 평균입자크기는 10 μm, 겉보기 밀도는 1.8 g/cm<sup>3</sup>(21.4% TD), 텡밀도는 2.99 g/cm<sup>3</sup>(35.6% TD)였다. U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말의 성형은 100-300 MPa에서 수행하였다. 성형체의 열처리조건에 따른 소결거동은 TMA (Thermo Mechanical analysis) 기기를 이용하여 분석하였으며, 열처리는 Fig. 1과 같은 조건에서 수행하였다. Ar 분위기에서 열처리는

소결거동을 확인하기 위해 10시간동안 충분히 길게 하였다.

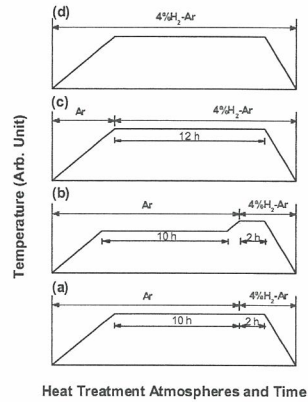


Fig. 1. Heat treatment conditions of U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> powder compacts.

### 3. 결과 및 토의

U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말의 성형압력에 따른 소결특성에 미치는 영향을 분석하기 위해서 Fig. 1.(a)의 조건에서 열처리를 하였다. 성형압력에 따른 성형밀도는 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 이론밀도(TD : Theoretical Density)의 57.8에서 65.4%로 증가하였다. 소결밀도는 성형압력의 증가에 따라서 UO<sub>2</sub> 이론밀도의 61.5에서 67.5%로 증가하였으며, 동일한 성형압력에서 소결밀도는 성형밀도 보다 약간 증가함을 보였다(Fig. 2). 동일한 압력(300 MPa)에서 압분한 성형체의 열처리 온도에 따른 소결특성을 Fig. 3에 나타내었다. 열처리온도에 따라서 소결밀도는 65.7에서 67.5% TD로써 열처리온도의 영향을 거의 받지 않았다. 이는 Fig. 4에서 보듯이 열처리시간이 증가함에 따라서 성형체의 수축율은 거의 일정하게 되며, 온도에 의한 차이도 거의 없었다. 따라서 다공성 펠렛을 제조하기 위한 열처리조건은 핵종휘발율을 높일 수 있는 조건에 의해서 결정됨을 보였다. 또한 환원처리에 의한 성형체의 수축은 거의 되지 않음을 알 수 있었다. 즉, Ar 분위기에서 열처

리를 하여 핵종이 제거될 경우에 4%H<sub>2</sub>-Ar에 의한 환원처리 온도는 낮게 하여도 될 것으로 여겨진다.

Fig. 1에 나타낸 열처리조건이 소결특성에 미치는 영향을 1500°C에서 시험하여 그 결과를 Fig. 5에 나타내었다. U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 성형체를 4%H<sub>2</sub>-Ar로 열처리할 경우에(Fig. 1의 (d) 조건) 소결밀도가 71% TD로 가장 높았으나, 결정립 크기(Fig. 6.(a))는 Fig. 1의 (a) 조건에서 열처리한 Fig. 6.(b)보다 작았다. Fig. 1의 (a) 조건에서 수행할 경우 전해환원공정에서 전해염의 침투가 용이한 구조를 보인다(Fig. 6.(a)).

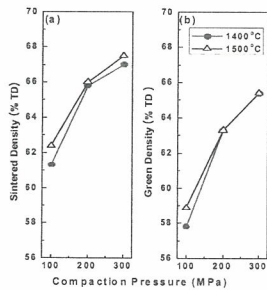


Fig. 2. Change of sintered densities with compacting pressure.

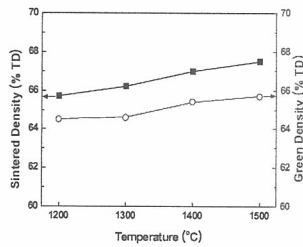


Fig. 3. Change of sintered densities with heat treatment temperature.

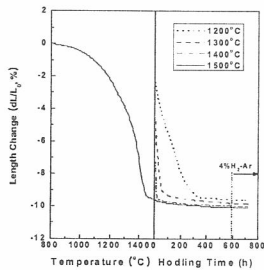


Fig. 4. Densification behavior of U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> compact with heat treatment temperature.

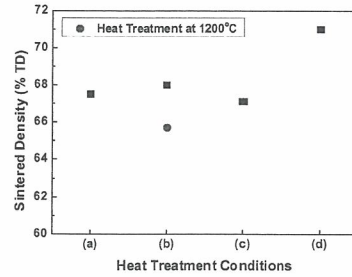


Fig. 5. Variation in sintered densities with heat treatment conditions.

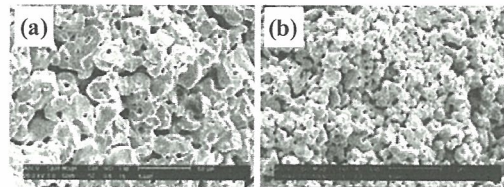


Fig. 6. SEM microstructure of porous pellets with heat treatment conditions

#### 4. 결론

핵종휘발과 소결밀도에 영향을 미치는 열처리 조건에 따른 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>의 소결거동을 분석한 결과에 의하면, 소결밀도는 고온에서 유지시간만 충분히 주면 온도에 의해서는 거의 영향을 받지 않았다. 따라서 열처리조건은 핵종휘발율을 높일 수 있는 조건에 의해서 결정됨을 보였다.

#### 5. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력기술개발사업으로 지원받았습니다.

#### 6. 참고문헌

- [1] Y. Sakamura and T. Omori, Nucl. Technol., 171, pp. 266-275 (2010).
- [2] 최은영 등, 2011 한국방사성폐기물학회 추계학술대회 논문요약집, pp. 169-170 (2011).
- [3] Y. S. Kim, ANL/ED/CP-100465 (2000).