

CeO₂ 함량 및 산화온도에 따른 (U,Ce)O₂ 분말특성

나상호, 이기원, 김기홍, 유명준*

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 989번길 111

*한진원자력연료(주), 대전시 유성구 덕진동 493

shna@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 UO₂ 연료는 연소도에 따라 핵분열생성물과 연료의 결정립과 같은 미세구조에 영향을 받는다. 연소도 10,000 MWd/MTU에 핵분열생성물이 연료내에 약 0.54wt% 생성된다. 사용후연료의 결정립과 같은 경우, 연소도가 커질수록 UO₂ 소결펠렛의 반경방향으로 불변(undisturbed) 영역, 등축정(equiaxed) 영역 그리고 주상정(columnar)영역으로 확대된다. 이와 같은 핵분열생성물 생성량과 결정립 크기로 인하여 사용후 UO₂를 산화시킬 경우, 산화되는 분말입자의 크기가 달라질 수 있다[1]

본 연구에서는 연소도에 따라 생성되는 핵분열생성물을 첨가하여 제조된 소결펠렛을 산화시켜 함량과 산화온도에 따라 산화된 분말의 입자크기를 조사하고자 한다.

2. 본론

2.1 시편 준비 및 실험 방법

연소도 30,000 MWd/MTU, 60,000 MWd/MTU 그리고 120,000 MWd/MTU를 조사하기 위하여 모의 핵분열생성물을 각각 1.62wt%(SS-1), 3.26wt%(SS-2)

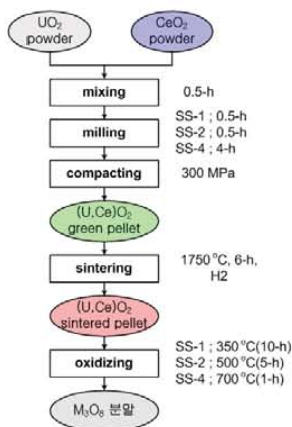


Fig. 1 Schematic flow process for M₃O₈ powder.

그리고 6.25wt%(SS-4)를 첨가하였다. 모의 핵분열생성물은 CeO₂를 선정하였다.

Fig. 1에 도시한 바와 같이 제조 및 산화공정은 다음과 같다. UO₂에 첨가혼합된 분말은 본 연구원에서 개발한 다이내믹밀[2]이용하여 분쇄하였다. SS-1과 SS-2는 밀링시간 0.5시간, SS-4는 4시간 밀링시킨 분말을 300 MPa

의 성형압력으로 성형된 성형체를 수소분위기, 1750 °C에서 6시간 소결하였다. 이와 같이 소결된 소결펠렛의 소결밀도는 약 95%T.D.이며, 결정립 크기는 약 10 μm으로 나타났다. 이와 같이 제조된 소결펠렛을 대기 분위기하에서 산화시켰다. 즉 SS-1인 경우, 350 °C에서 10시간, SS-2인 경우 500 °C에서 5시간 그리고 SS-4인 경우 700 °C에서 1시간 산화시켰다. 상기 조건을 설정한 이유는 산화분말 입자의 크기는 함량 및 온도에 영향을 받기 때문이다. 즉 함량이 증대하거나 산화온도가 높아지면 산화되는 분말의 입자크기는 증대하기 때문이다[3].

소결밀도는 수침법으로, 결정립 크기는 Hayn의 선형교차법[4]으로, 산화시킨 분말의 입자크기는 sieve test로 측정하였다.

2.2 실험 결과

Fig. 2에 SS-1, SS-2 그리고 SS-4의 산화온도 및 산화시간에 따라 생성된 M₃O₈ 분말의 sieve test에 의한 방법으로 측정된 입자크기를 백분율로 나타낸 것이다.

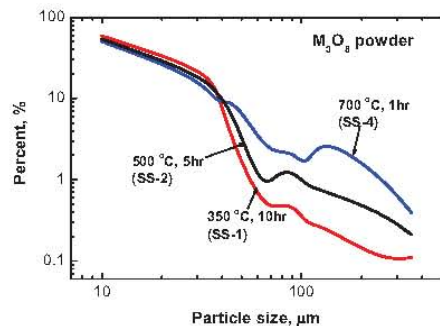


Fig. 2 Particle size distribution of M₃O₈ powder by sieve test.

그림에 나타난 바와 같이, 함량의 증대 및 산화 온도 증대에 따라 입자크기는 보다 큰 쪽으로 향함을 알 수 있다. 즉 약 40 μm 이하의 크기의 백분율은 SS-1(CeO₂ ; 1.62wt%, 350 °C, 10-h)에서

가장 크고, SS-2(CeO_2 ; 3.26wt%, 500 °C, 5-h) 그리고 SS-4(CeO_2 ; 6.25wt%, 700 °C, 1-h)의 순으로 작아짐을 보여주는 반면에, 약 40 μm 보다 큰 입자크기의 백분율에서는 SS-1, SS-2 그리고 SS-4의 순으로 커짐을 보여준다. 결과적으로 함량이 증대하고 산화온도가 높은 경우에는 산화되는 M_3O_8 의 분말입자크기는 증대하는 것으로 나타났다. 이와 같은 결과를 고려하여 향후 연소도에 따라 핵분열생성물을 함유한 사용후 UO_2 펠렛을 산화시킬 경우, 산화되는 M_3O_8 의 분말의 크기 분포가 다르므로, 균질화를 위해서는 조대한 분말을 분쇄하는 밀링공정의 삽입이 필요할 것으로 사료된다.

Fig. 3에 SS-1, SS-2 그리고 SS-4의 M_3O_8 분말 형태를 SEM 사진으로 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이, 함량이 증대하고 산화온도가 높아질수록 분말은 조대해지는 것임을 보여준다.

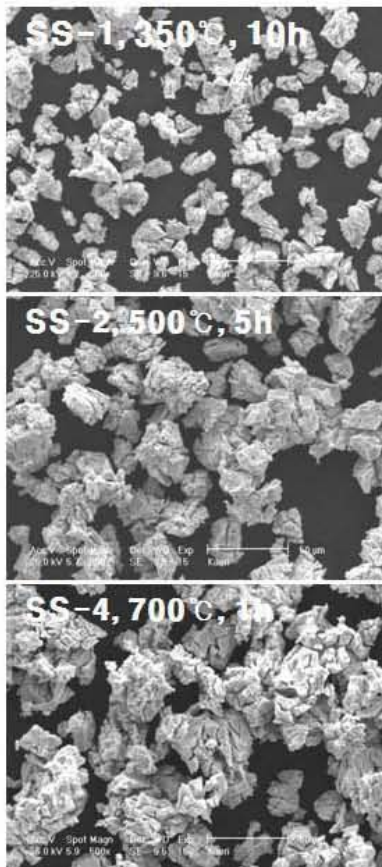


Fig. 3. Oxidized M_3O_8 powder morphology of SS-1, SS-2 and SS-4.

3. 결론

연소도에 따라 생성되는 핵분열생성물의 함량을 모사한 $(U,Ce)O_2$ 을 제조하여 산화온도 및 시간에 따라 산화시킨 분말의 입자크기를 측정하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

- CeO_2 함량이 증대하고 산화온도가 높을수록 미세한 분말크기의 백분율은 작아지고, 조대한 분말크기의 백분율은 커짐을 나타냈다.
- CeO_2 함량 및 산화온도에 의한 입자크기 분포의 변곡점은 약 40 μm 인 것으로 나타났다.

4. 참고문헌

- [1] 나상호, 핵연료주기개론, 한국원자력연구소, 1992, p.154.
- [2] 나상호 외, 다이내믹 밀, 일본특허, 특허제 3722789호(평성 14년).
- [3] 나상호 외, 방사성 폐기물학회, 2011 춘계학술대회, pp.163-164.
- [4] ASTM E112-88.