

## 폐 AC용액으로부터 제조된 AUC분말의 특성에 대한 연구

정경채 · 김태준 · 최중현 · 박진호

한국원자력연구소 응용연구그룹

(1995년 11월 1일 접수)

### A Study on Characteristics of AUC Powder Prepared with the Waste AC Solution

Kyung-Chai Jeong, Tae-Joon Kim, Jong-Hyun Choi and Jin-Ho Park

Advanced Research Group, Korea Atomic Energy Research Institute

(Received November 1, 1995)

#### 요 약

핵연료분말 제조공정중에서 발생하는 폐 AC용액을 재순환하기 위해 기존의 암모니아 및 탄산가스 대신 AC용액을 사용하여 AUC분말을 제조하여 분말의 특성을 파악하고, 가스로 제조된 분말들과 비교해 봄으로써 분말제조시 사용된 폐용액의 재순환 가능성을 검토하고자 하였다. AUC분말 제조공정시 중요 조업변수인 pH 및 반응온도를 변경하여 AUC분말을 제조한 결과, AUC 핵생성시 반응용액내 탄산이온의 농도가 충분히 존재하면 pH에 관계없이 monoclinic 형태의 입자들이 얻어지며, 기존의 가스 사용시보다 입자사이의 뭉침현상이 심하게 나타나나 최종 핵연료분말로서의 사용가능성은 충분한 것으로 나타났다. 조업변수중 반응온도의 영향은 미세하며, 최종 핵연료분말 가공시 AC용액으로 제조된 AUC분말을 사용하여  $UO_2$ 로 변환한 분말의 특성이 기존의 가스를 사용하여 제조된 분말과 유사한 특성을 나타내는 것으로 보아 상용의 AUC 변환공정에서 발생하는 폐 AC용액의 재순환 가능성은 충분할 것으로 판단된다.

#### ABSTRACT

This study was investigated on the recycle feasibility of the waste AC (Ammonium Carbonate) solution produced in a commercial AUC (Ammonium Uranyl Carbonate) conversion plant. AUC particles were produced with the AC solution which was prepared with AC solid-agent instead of ammonia and carbon-dioxide gases. As the results, particles of monoclinic shapes has been obtained regardless of the pH change if the carbonate concentration is sufficient in the mother liquor. Also, a lot of twinned or aggregated particles were formed in case of the increase of pH in the reaction system, but not affected in the change of temperature. Consequently, the characteristics of the particles which converted from AUC were produced with AC solution to  $UO_2$  particles, specific surface area, shape, sintered density, and others were similar to that of the particles which were produced with gases only, when the pellets are fabricated in the nuclear fuel manufacturing process. So the waste AC solution which is produced in the commercial AUC conversion plant, is possible to recycle.

**Key words:** Waste solution, AUC powder, Ammonium carbonate solution

#### 1. 서 론

90년대 중반인 현재 우리나라는 전력공급량의 절반 이상을 원자력발전(경수로 및 중수로)에 의존하고 있으며, 여기에 사용되는 핵연료분말은 극히 일부를 제외하고 전량 국내에서 제조된  $UO_2$ 분말을 원료로 사용하고 있다. 일반적으로 원자력 발전에 사용되는 핵연료분말의 제조 방법은 습식법과 진식법으로 구분되고 있으며, 우리나

라의 경우 저농축 우라늄화합물(농축도 3.5% 이하)을 원료로 해서 중간물질로 AUC(Ammonium Uranyl Carbonate,  $(NH_4)_2[UO_2(CO_3)_2]$ )분말을 제조하고, 이를 다시 반응가스와 고온에서 배소·환원시켜 최종  $UO_2$ 분말을 제조하고 있다.

$UO_2$ 분말 제조시 중간물질로 생성되는 AUC분말의 제조공정은 1970년대 독일 Nukem에서 개발한 습식공정으로 비교적 최신의 공정이며<sup>1-3)</sup>, 이는 원료물질인 UN

(Uranyl Nitrate,  $UO_2(NO_3)_2$ )용액이나 저농축의  $UF_6$  가스를 사용하여 수용액중에서 암모니아 및 탄산가스와 함께 침전반응시킨 후 여과 및 건조과정을 거쳐 얻어지는데, 중간물질로 생성되는 AUC입자의 특성이 최종 핵연료분말의 특성에 영향을 주는 것으로 알려져 있기 때문에 AUC분말의 특성을 잘 조절하는 것이 중요하다<sup>4)</sup>.

AUC분말 제조에 있어서 바람직한 형태나 적절한 크기의 분말을 얻기 위한 중요한 인자로 입자 생성시의 pH, bulk 용액에서의 각 이온종의 비율, 반응물의 농도, 반응온도, 반응 용기의 geometry 등 여러 인자들이 있을 수 있으며, 그 중 AUC입자의 모양에 관계되는 인자로 pH 및 탄산암모늄(Ammonium Carbonate,  $(NH_4)_2CO_3$ ) 농도인 것으로, 입자의 크기 및 입도분포에 영향을 주는 인자로는 반응물의 농도 및 온도인 것으로 알려져 있다. 이와 관련 이제까지의 연구에서 밝혀진 결과를 보면 원료물질로 UNH(Uranyl Nitrate Hexahydrate,  $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ )용액과 암모니아 및 탄산가스를 사용해서 pilot scale에서 AUC를 제조한 경우, 바람직한 pH의 범위는 8.0~8.5, 반응용액내에서 탄산이온의 농도와 우라닐이온의 농도비( $[CO_3^{2-}]/[UO_2^{2+}]$ )가 7 이상, 반응온도는 약 60°C 부근으로 알려져 있다<sup>5)</sup>. 그 밖에 반응물의 농도에 따라 고농도의 원료물질을 사용할 경우 입자의 크기는 작아지고 입도분포는 좁아지는 것으로 밝혀진 바 있다.

그러나 본 연구에서는 상기와 달리 반응물로 우라늄 원료물질에 암모니아나 탄산가스등 가스를 사용하지 않

고, AC용액(AUC 제조과정(Fig. 1 참조)중 각 단위공정에서 pH가 다른 고농도의 AC용액이 폐액으로 발생)을 재사용하여 AUC분말을 제조하는 경우, 반응시스템내에서의 분위기가 기존 가스 사용시의 조건에 비해 달라지기 때문에 생성되는 AUC입자의 특성도 변화될 것으로 예측된다.

따라서 본 연구는 AC용액을 사용하여 AUC분말을 제조한 후 분말의 특성을 확인하고, 기존의 상용공장에서 가스로 제조된 AUC분말과 특성을 비교해 봄으로써 폐 AC용액의 재사용 가능성을 파악하고자 하였다.

## 2. 실험방법

### 2.1. 원료물질의 제조 및 실험장치

우라늄 원료물질인 UNH용액은 기존의  $UO_2$ 분말을 진한 질산에 용해시킨 후 불순물의 분리를 위해 TBP (Tri-butyl Phosphate) 및 dodecane을 적정비율로 혼합한 용액에서 액-액 추출한 후, 분리하여 약 300 g-U/L 농도로 제조하였으며, 반응물질로 사용되는 탄산암모늄 용액은 증류수와 암모니아수를 혼합한 용액에 원하는 농도만큼의 AC 시약(일제 Junsei 제품)을 용해시켜 사용했다.

실험에 필요한 장치는 유리를 사용하여 double jacket 형태로 약 200 ml 용량이 되도록 제작하였으며, 반응물의 원활한 혼합을 위해 magnetic stirrer가 사용되었고(Fig. 2 참조) 반응시스템의 pH 조절을 위해 밀도의 암모니아 가스 공급장치를 설치하였다.

### 2.2. AUC 분말의 제조 및 분석

먼저 적정 온도로 유지되어 있는 반응용기 내에 초기용액으로 약 30 g-AC/L 농도의 탄산암모늄 용액을 AC 고체 시약을 이용해서 제조하고, 반응기 외부에서 공급

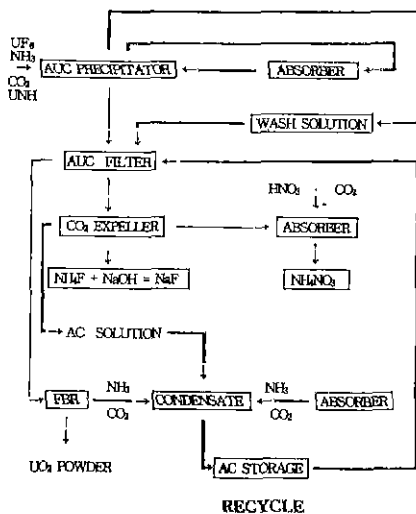


Fig. 1. Schematic flow diagram for the preparation process of nuclear fuel powder.

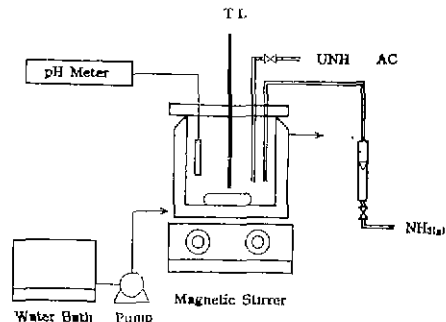


Fig. 2. Schematic diagram of the experimental apparatus.

되는 온수를 이용하여 원하는 온도로 가열한 후, 별도로 마련된 고농도(약 200 g-AC/L)의 탄산암모늄 용액과 우라늄 원료물질(Uranyl)용액을 burette를 이용하여 적하시켰다. 반응용기내에는 온도감지를 위해 유리온도계와 pH 조절을 위해 pH meter를 설치하였으며, pH의 조절은 암모니아 가스를 사용하였다.

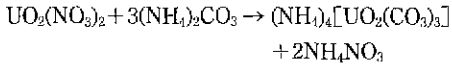
초기용액에 암모니아 가스를 공급하여 원하는 pH 범위로 조절한 후, AC용액과 우라늄용액을 반응기 안으로 적하시키면 일정시간이 경과한 후, 반응용기내로부터 AUC입자의 생성(induction)을 육안으로 확인할 수 있으며, 반응물의 공급이 완료되면 진공여과기를 이용하여 즉시 여과한 후, methanol을 사용하여 세척하고 상온에서 건조하여 시료로 사용한다.

제조된 AUC입자의 구성성분은 FT-IR(미, Nicolet Model 800)로 확인하였으며, Spectrofluorometer(Edinburgh, CD-900)를 이용하여 pH 변화에 따라 생성된 입자의 물성변화를 확인하였다. 입자의 모양과 응집상태를 관찰하기 위해 주사전자 현미경(SEM: JEOL사 제품)을 사용하였고, 입자의 크기 및 입도분포는 CILAS사 제품인 Granulometre 715를 사용하여 순수 methanol 용액에 분산시킨 후 입도분포를 측정하였다.

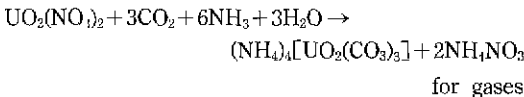
3. 결과 및 고찰

3.1. AUC 분말의 특성

핵연료분말의 중간물질로 생성되는 AUC입자들은 수용액상에서 암모니아 및 탄산가스(혹은 탄산암모늄 용액)와 우라늄 물질을 반응시키면



for AC solution



와 같은 방정식에 의해 결정성 우라늄화합물(AUC)로 침전된다<sup>6)</sup>. 이때 AUC입자의 생성 및 성장에 영향을 미치는 중요한 변수로 우라늄 농도, 탄산암모늄 농도, pH, 반응온도 등에 따라 초기 생성입자의 갯수나 크기, 입도분포 등이 달라지나 상용의 AUC분말 제조공정에서는 우라늄농도나 탄산암모늄농도를 UNH(혹은 UF<sub>6</sub>)와 탄산가스 및 암모니아 가스로 일정하게 공급하기 때문에, 실질적으로 입자의 생성 및 성장에 영향을 미치는 요인으로 반응시스템 내에서의 pH와 반응온도가 AUC입

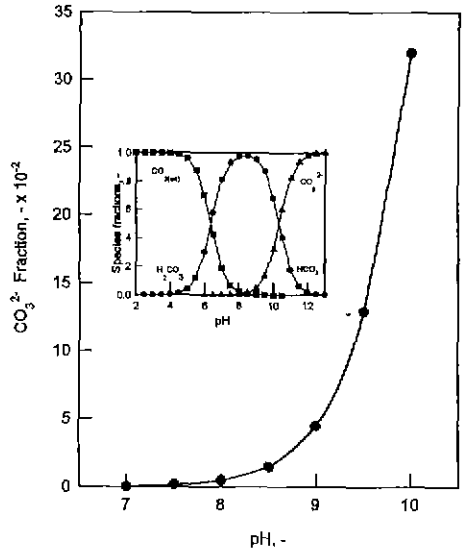


Fig. 3. The fraction of the carbonate ion according to pH change.

Table 1. Distribution of Carbonate Species as a Function of pH of Water.

pH	Fraction of total carbon dioxide present as;		
	H <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	CO <sub>3</sub> <sup>2+</sup>
7.0	0.1883	0.8113	0.0004
7.5	0.0683	0.9303	0.0014
8.0	0.0226	0.9728	0.0046
8.5	0.0072	0.9783	0.0145
9.0	0.0022	0.9530	0.0448
9.5	0.0006	0.8701	0.0129
10.0	0.0002	0.6801	0.3197

자의 특성을 지배하고 있다.

일반적으로 AUC입자의 생성은 bulk용액내의 ion중에서 UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>에 대한 CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>의 비율에 따라 상기 방정식의 AUC외에 4가지 정도의 서로 다른 AUC 유사화합물이 생성되며<sup>7)</sup>, [CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>]/[UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>]의 비율에 따라 입자의 모양도 달라지는 것으로 알려져 있다. 한편 반응시스템내에서의 CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> 농도는 침전반응이 일어나는 bulk 용액의 pH에 따라 Fig. 3처럼 다르게 나타나기 때문에<sup>8,9)</sup> 반응시스템 내로 인입되는 원료물질들의 농도가 일정하다면, bulk 용액중의 pH에 따라서 AUC입자의 핵생성에 관여하는 CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>의 농도가 Table 1에 나타낸 것처럼 증가하기 때문에 반응시스템내에서 핵이 생성되는 속도(nucleation rate) 및 생성된 입자의 갯수나 성장속도가 달라지고

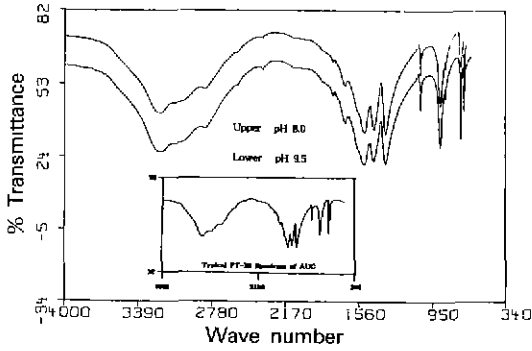


Fig. 4. FT-IR spectrum for the AUC powder produced with AC solution.

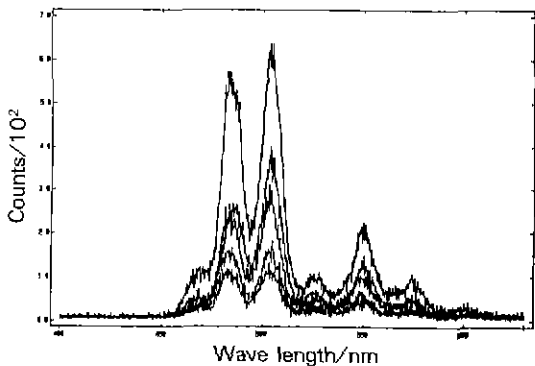


Fig. 5. Fluorescent spectrum for the AUC powder produced with AC solution.

이로 인해 제조된 입자의 특성이 달라질 것으로 예상되어 AC용액을 사용하여 pH를 변화시키면서 AUC를 제조한 후 FT-IR 및 형광분석을 시도하였다.

Fig. 4는 AUC입자의 FT-IR spectrum을 나타낸 그림으로,  $\text{NH}_4^+$  의 absorption band로  $1410, 2835, 3210 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\text{CO}_3^{2-}$ 의 absorption band로  $690, 720, 845, 1050, 1520 \text{ cm}^{-1}$ , 그리고  $\text{UO}_2^{2+}$ 의 asymmetric vibration band로  $890 \text{ cm}^{-1}$ 에서 peak가 나타나고 있는데, 이는 기존의 가스를 사용하여 제조된 입자의 경우와 peak들이 동일한 형태이고, 각 pH 조건에서 생성된 입자들을 형광분석한 Fig. 5에서도 pH 변화에 관계없이 동일한 형태의 peak들이 나타나고 있는 것으로부터 반응시스템 내의 우라닐이온에 대한 카본네이트이온의 비율이 7 이상으로 충분한 경우 생성되는 AUC입자의 조성은 pH 변화 및 가스 또는 AC용액의 사용에 관계없이 동일한 입자들이 얻어짐을 알 수 있었다.

### 3.2. 입자의 형태와 응집현상

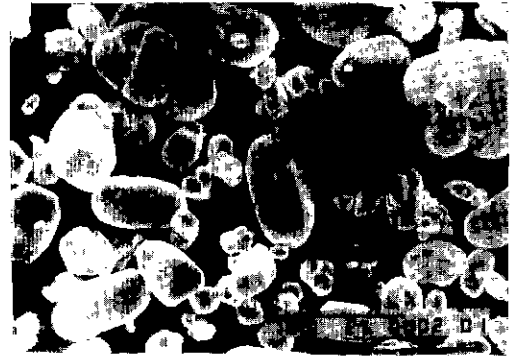


Fig. 6. SEM photographs for the shape of AUC particles.

AUC입자의 형태와 크기는 여러가지로 제조될 수 있으나 핵연료 물질로 사용되는 최적상태의 입자모양은, Fig. 6 상부의 monoclinic 형태이며, 반응시스템의 geometry(pump impeller, 반응기벽, 입자들 사이의 충돌)에 의해 corner와 edge를 rubbing시켜 Fig. 6의 하부에 나타난 것처럼 둥근 모양으로 제조하고 있으며, 입자의 구성성분은 Fig. 4에 나타난 것처럼 전형적인 AUC 구성성분으로, 또 입자가 갖고 있는 가로와 세로의 비율(aspect ratio)이 1:2~3 정도 되는 것이 좋다. 그러나 AUC입자의 모양은 핵이 생성되는 조건에 따라 변화가 가능하고 반응시스템내에서의 탄산암모늄 농도와 우라늄 농도의 비율에 따라 4~5가지 형태로 제조되는 것으로 알려져 있으나<sup>10)</sup>, 농도비율에 대해 간단히 언급되어 있을 뿐 AC용액을 사용하여 제조된 입자의 특성이나 monoclinic 형태의 입자 제조시 pH 변화에 대한 영향등에 대해서는 밝혀져 있지 않다.

한편, AUC입자의 핵생성시 bulk 용액속에서의  $\text{UO}_2^{2+}$  이온과  $\text{CO}_3^{2-}$  이온의 반응은 다른 어느 이온종과의 반응보다 빠르게 반응하여, 탄산우라닐이온 [ $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ ]의 착염(complex compound) 형태를 띠고, 이러한 탄산

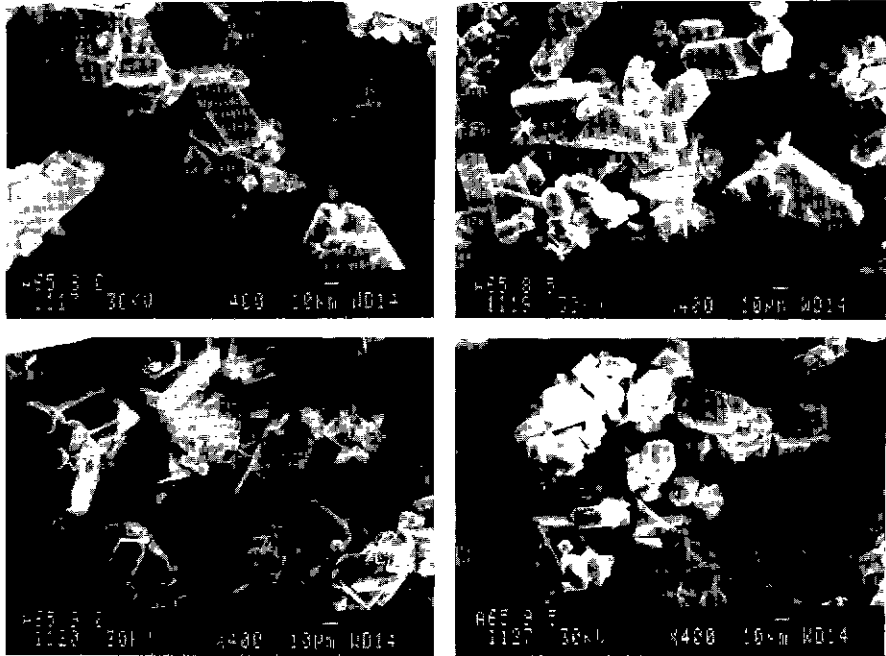


Fig. 7. SEM photographs for the shape of AUC particles produced with AC solution at different pH.

우라닐 착이온이 bulk 용액속의  $\text{NH}_4^+$ 과 반응하여 AUC라는 핵을 생성하게 되는데, 이때 bulk 용액 속에서 반응물질들이 diffusion되는 속도가 용액을 사용하는 경우 기존의 가스 사용시보다 더욱 빠르게 진행될 것이고, 고농도의 탄산암모늄 용액이 직접 반응물질로 공급되기 때문에 bulk 용액 속에서 AUC입자의 초기 핵생성시 stable한 AUC 핵들이 생성되지 못하고, 입자들이 서로 twinned되거나 aggregation되는 경향이 많아지며 이러한 경향은 고농도의 탄산암모늄 용액을 사용하는 경우가 더욱 심하다.

또 동일한 농도를 갖는 탄산암모늄용액을 사용하더라도 반응시스템 내에서의 분위기를 지배하는 pH가 높은 경우 입자들의 응집현상이 증가하는 것으로 나타나는데, 이는 반응시스템 내의 pH를 증가시키기 위해 암모니아 가스를 투입함으로써 용액내에서의  $\text{NH}_4^+$ 의 농도가 증가하게 되어 암모니아가 hydrolysis되면서 생성되는  $\text{OH}^-$  양이 상대적으로 증가하여 입자들 사이의 응집현상을 야기시키거나, 상기 Fig. 3에서처럼 pH 증가에 따라  $\text{CO}_3^{2-}$ 의 농도가 상대적으로 많이 증가하여 국부적으로 고농도가 유지됨으로써 AUC 초기 핵생성시 입자들 사이의 응집현상이 증가하는 것으로 사료된다.

Fig. 7은 AC용액을 사용하여 AUC입자를 제조한 경우로, 일정한 반응온도에서  $[\text{CO}_3^{2-}]/[\text{UO}_2^{2+}] > 7$ 을 유지한

후 bulk 용액내의 pH만을 변화시켜 AUC입자를 생성시킨 다음 약 3분후 시료를 채취하여 SEM 사진을 관찰한 것으로, bulk 용액내에서의 pH 증가에 따라 생성되는 AUC입자의 형태는 대부분 monoclinic 형태를 띠고 있으나, aspect ratio가 점점 감소하는 현상을 나타내고 있는 것으로 보아 반응시스템내의 pH 증가에 따라 AC 용액을 직접 사용하는 경우  $\text{CO}_3^{2-}$ 의 농도가 실제 가스를 사용하는 경우보다 훨씬 많이 존재하는 것으로 생각된다.

### 3.3. 입자의 크기와 입도분포

일반적으로 용액속에 용해되어 있는 이온들을 고체물질로 침전시키거나 결정화시키는 경우, 원하는 온도에서 그 물질이 갖고 있는 고유의 용해도와 metastable zone (준안정 영역)에 따라 생성된 핵이 안정적으로 성장하거나 혹은 McCabe  $\Delta L$  법칙<sup>13)</sup>에 따라 생성된 핵이 다시 재용해(ripening)되어 주위의 다른 입자의 성장에 기여하게 된다. 그러나 본 연구에서와 같이 bulk 용액상에 존재하는 각 이온들이 고농도로 유지되어 있는 경우 위와같은 법칙에 따라 입자의 생성이나 성장이 이루어질 수 없을 것으로 예측되고 그 결과 최종 입자의 크기나 입도분포가 달라질 것으로 추측된다.

Fig. 8에 상온에서 제조된 AUC분말의 입도분포를 나타내었다. pH 변화에 따라 입자의 size가 40  $\mu\text{m}$  부근에서

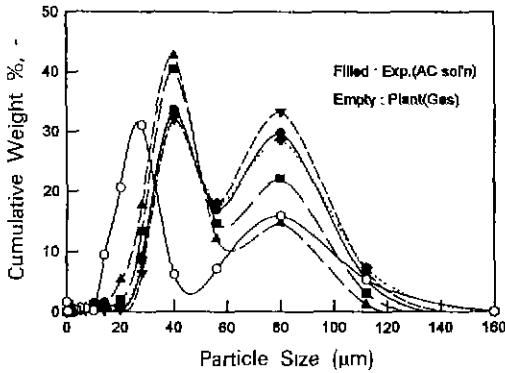


Fig. 8. Particle size distributions for the AUC particles produced with AC solution at room temperature.

1차 peak가, 약 80 μm 부근에서 2차 peak가 나타나고 있으며, 이러한 현상은 반응온도 및 pH에 따라 약간의 차이는 있으나 동일한 유형으로 나타나고 있다. 이것은 기존의 가스를 사용하여 핵을 생성시킨 후 안정적으로 성장시키는 과정을 거치는 것이 아니라 고농도로 유지된 반응용액들이 직접 반응계에 투입되기 때문에 반응시스템이 불안정해짐으로써 핵생성이나 성장단계에서 입자들 상호간에 aggregation되거나 twin 됨으로써 반응시스템을 안정화시키려는 경향으로 해석이 가능하다.

또한 입도분포가 bimodal 형태를 나타내는 것은 초기 생성된 일부 핵들이 안정하게 성장하는 경우와 secondary nucleation에 의해 생성된 핵들이 기존의 성장입자에 영향을 줌으로써 나타나는 현상으로 해석되며, 1차 peak의 경우 초기 핵생성시 발생된 입자들이 정상적으로 성장하면서 나타내는 입자분포일 가능성이 크고, 2차 peak의 경우 초기 생성된 핵들이 성장하면서 새로운 핵들의 발생과 함께 서로 뭉쳐 성장하거나 아예 초기에 뭉쳐져서 생성된 결정들이 성장함으로써 나타나는 입도분포를 나타낸 것으로 추측되며, 이는 Fig. 8의 가스를 사용하여 제조된 분말의 입도분포 결과에서 2차 peak의 양이 상대적으로 많은 것으로부터도 AC용액을 사용하는 경우 입자들이 많이 뭉쳐 있는 것으로 사료된다.

### 3.4. 분말특성의 비교

AC용액을 사용하여 제조된 AUC분말과 기존의 가스를 사용하여 제조된 AUC분말의 특성 차이를 관찰하기 위해 AUC분말을  $UO_2$ 분말로 변환하여 비표면적과 O/U ratio 그리고 소결밀도를 측정하였다.  $UO_2$ 분말은 유동층반응기 (Fluidized Bed Reactor)에서 AUC분말을 배소, 환원시

Table 2. Comparison with PWR Specification and Experimental Powder.

	Specification	Experimental
BET ( $m^2/g$ )	4.5~5.7	4.8~5.7
O/U ratio (-)	2.08~2.15	2.095~2.195
Moisture Content (%)	<0.4	0.2~0.3

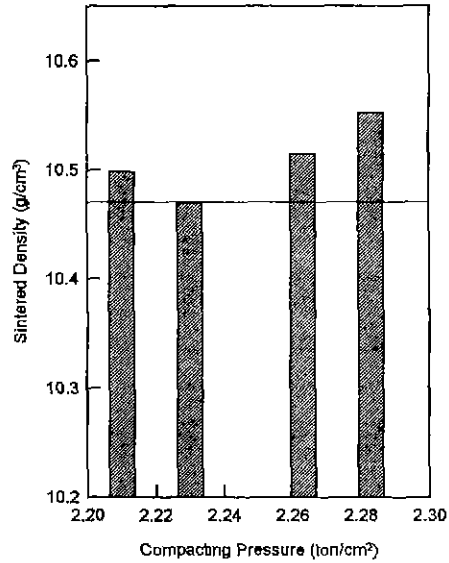
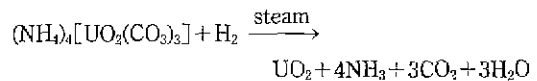


Fig. 9. Sintered density vs. compacting pressure.

키프로써 다음과 같은 방정식에 의해



연어지는데, 초기 AUC분말은 약 180°C 부근에서 수소와 수증기 분위기하에서 분해되기 시작하여  $UO_3 \rightarrow U_2O_8$ 의 환원과정을 거쳐 최종  $UO_2$ 분말이 얻어지나, 공기중에서 매우 불안정하기 때문에 안정화기에서 공기를 이용하여 입자의 표면을 slightly oxidation시킴으로써  $UO_{2+x}$  형태의 안정한 분말로 변환된다. 본 연구에서는 가스를 사용하여 제조된 AUC분말과 AC용액을 사용하여 제조된 AUC분말을 동일한 조건으로 pilot 규모 유동층반응기에서  $UO_2$ 분말로 변환하여 시료로 사용하였다.

Table 2에 AC용액을 사용하여 pilot plant에서 AUC분말을 제조한 후  $UO_2$ 로 변환된 분말의 비표면적(surface area, BET)과 O/U ratio 및 수분의 함유량을 경수로형 분말이 갖추어야 할 spec.과 함께 나타내었으

며, spec. 내에 들어오는 대부분의  $UO_2$  분말들을 압분하여 green pellet으로 제조하고, 이를 약  $1700^\circ C$ 로 소결하여 최종  $UO_2$  pellet을 제조하였다. 상기에서 제조된 AC-AUC- $UO_2$  분말이 핵연료분말로 사용가능한 지의 여부는 제조된  $UO_2$  pellet의 spec.에 따라 선택되며, 이 spec. 중에서 가장 중요한 인자로 pellet 가공전  $UO_2$  분말의 비표면적과 pellet 가공 후의 소결밀도가 좋아야 한다. 일반적으로 pellet의 소결밀도는 중수로형이나 경수로형 이나에 따라 다소 차이가 있으며, Fig. 9는 AC-AUC- $UO_2$  분말로 제조된 pellet의 소결밀도를 나타낸 그림으로, AUC- $UO_2$  변환시 조업조건을 변경해서 얻어진 분말들을 원료로 해서 pellet을 제조한 경우이다. 약 2.2 ton 압분 압력에서  $10.47 g/cm^3$  부근의 소결밀도 값을 갖는 것으로 나타났으며 이는 경수로형  $UO_2$  pellet 제조공정에서 실제 적용하고 있는 소결밀도의 기준내에는 들어오고 있으나, 기준선의 하한값 부근에 분포되어 있다. 그러나 이 값들은 소규모장치에서 얻어진 분말들을 사용한 경우로 실제 pellet의 소결밀도에 영향을 주는 주요 요인인 AUC- $UO_2$  분말로의 변환시 비표면적을 적절히 조절하거나,  $UO_2$  분말들이 갖고 있는 crystallite를 양호하게 성장시키는 문제등 유동층 반응기에서의 조업개선과 AC-AUC 침전조업에서 초기 AUC 핵생성의 방법을 개선하거나 반응장치내에서의 혼합상태를 좀 더 균일하게 향상시키는 등 입자들의 응집현상을 최대한 억제하는 개선 공정이 이룩되면, pellet의 소결밀도는 높아질 가능성이 충분하다고 사료된다.

#### 4. 결 론

핵연료분말 제조공정중에서 발생하는 폐 AC용액 재순환을 위하여 모사 AC용액을 사용하여 AUC분말을 제조한 결과 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. AC용액을 사용하여 AUC분말을 제조하는 경우 기존의 가스 사용시와 동일한 물성을 갖는 입자들이 얻어졌으나 입자들 사이에 응집현상(twinned or aggregation)이 심하게 나타났다.
2. AUC 제조시 반응용액내에 탄산이온의 농도가 충분하면 pH에 관계없이 monoclinic 형태의 입자들이 얻어지며, pH를 증가시키는 경우 입자들 사이의 응집현상은 더욱 심하게 나타나고, 단일 입자의 크기는 작아

지는 경향을 보이고 있으며, 최적 AUC 제조조건은 반응용액중 탄산이온의 존재비율이 가장 작은 pH 8.1 부근인 것으로 판단된다.

3. 제조된 AUC 입자들의 입도분포를 측정된 결과 반응시스템의 pH 및 반응온도 변화에 따라 약간의 차이는 있으나 거의 동일한 유형으로 bi-modal 형태 입도분포를 나타내었다.

4. AC용액을 사용하여 제조된 AUC 분말을  $UO_2$  분말로 변환하여 기존의 가스를 사용하여 제조된 분말과 특성을 비교한 결과, 동일한 특성을 나타내는 것으로 판단되며, 상용 plant에서 발생하는 폐 AC용액의 재활용은 충분할 것으로 사료된다.

#### REFERENCES

1. H. Assmann, and M. Becker, "Technology of  $UO_2$  Fuel Fabrication by the AUC Powder Process," *Trans. Am. Nucl. Soc.*, **31**, 147 (1979).
2. Hans Pirk et al., "Nucleonically Pure Uranium by Precipitation," *West Germany Patent*, 1,920,301 (1978).
3. British Patent, 1,206,048 (1970), "Uranium Dioxide Powder Production"
4. Yi-Ming Pan, and Che Bao Ma, "The Conversion of  $UO_2$  via Ammonium Uranyl Carbonate: Study of Precipitation, Chemical Variation and Powder Properties," *J. Nucl. Mat.*, **99**, 135-147 (1981).
5. 장인순, 박진호 외, "중수로 및 경수로용  $UO_2$  분말 특성연구," KAERI/RR-524/86, 한국에너지 연구소.
6. 장인순 외, "변환공정의 비교 연구," KAERI/AR-206/83, 한국에너지 연구소.
7. I.I. Chernayaev, "Complex Compounds of Uranium," *Israel Program for Scientific Translations, Jerusalem* (1966).
8. ASTM, "Standard Test Method for Carbon dioxide and Bicarbonate and Carbonate Ion in Water," D513-82, in vol. 1.01 (1987).
9. W. Fresenius et al., "Water Analysis," *Springer-Verlag* (1988).
10. E.H. Kim and C.S. Choi et al., "A Study on Morphology and Chemical Composition of Precipitates Produced from  $UO_2(NO_3)_2 \cdot (NH_4)_2CO_3$  Solution," *J. Nucl. Mat.*, **209**, 301-305 (1994).
11. R.H. Perry and C.H. Chilton, "Chemical Engineers' Handbook," 17-14, McGraw-Hill (1973).