

모의 고연소도 경수로 사용후핵연료를 이용한
건식 재가공 핵연료 소결체 제조 특성 연구
A Study on the Fabrication of Dry Recycling Nuclear Fuel Pellets
by using Simulated Spent PWR fuel of High Burnup

김웅기, 이재원, 신원철, 이영순, 박근일, 김수성, 이정원

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

본 연구에서는 60,000 MWd/tU의 고연소도 경수로 사용후핵연료를 이용한 건식 재가공 핵연료 제조 특성을 분석하기 위해 60,000 MWd/tU의 연소도를 가진 사용후핵연료의 핵분열생성물을 분석하고 핵분열 생성물을 모사한 산화물을 천연 UO_2 에 첨가하여 모의 사용후핵연료를 제조하였으며, 이 소결체를 산화와 환원이 3회 반복되는 OREOX 공정으로 분말화시켜 건식 재가공 핵연료 소결체 제조 실험을 수행하였다. 실험결과 건식 재가공 핵연료 제조공정을 이용하여 1700℃ 및 1750℃의 소결온도에서 이론밀도의 95~98 % 범위의 소결밀도와 5~6 μm 의 평균결정립 크기를 가진 소결체를 제조하였다.

Abstract

To study the fabrication characteristics of dry recycling nuclear fuel using spent PWR fuel with high burnup of 60,000 MWd/tU, the fission products of spent PWR fuel was analyzed by ORIGEN-2 code. Simulated spent PWR fuel pellets were fabricated by using UO_2 powder added by the simulated fission products. The simulated dry-recycling-fuel pellets were fabricated by dry recycling fuel fabrication flow including 3 cycle treated OREOX(Oxidation and REduction of OXide fuel) process. As the results of experiments, the densities of sintered pellets ranged from 95 % to 98 % of theoretical density at 1700 °C and 1750 °C of sintering temperature. The grain size of the pellets ranged from 5 to 6 μm .

1. 서 론

원자력발전의 경제성을 향상시키고 사용후핵연료 발생량을 감소시키기 위해 피복관의 내부식성 향상과 더불어 핵연료의 연소도 및 원자로의 핵연료 교체주기가 지속적으로 증가되고 있다. 1960년대 20,000~30,000 MWd/tU 연소도를 나타냈으나, 그 후 연소도는 45,000 MWd/tU으로 증가하였고, 1990년대에는 60,000~62,000 MWd/tU까지 증가하였다. 최근 각국의 핵연료 연소도 현황을 표 1에 정리하였다[1]. 각국별로 원자로 형태에 따라 연소도의 차이는 있지만 전반적으로 연료봉 기준으로 60,000~62,000 MWd/tU-rod avg. 수준이며, 미국의 경우 현재 62,000 MWd/tU에서 75,000 MWd/tU로 증가시키려고 노력하고 있다. 국내에서 현재 인허가된 최대 연소도는 60,000MWd/tU-rod avg.이며, 현재 국내 원자력발전소에서 사용되고 있는 핵연료의 연소도 현황은 표 2와 같다[1]. 따라서 앞으로는 고연소도 사용후핵연료가 계속 발생될 예정이며, 고연소도 사용후핵연료에 대한 건식 재가공 핵연료 제조공정기술을 확립할 필요가 있다.

표 1. 각국의 핵연료 연소도 현황

	연소도, MWd/tU
미국	62,000
프랑스	52,000
일본	48,000 (PWR), 50,000 (BWR)
독일	65,000 (PWR), 53,000 (BWR)
스위스	48,000-60,000

표 2. 국내 경수로 핵연료 연소도 현황

발전소	주기 길이 (month)	최대 집합체 연소도 MWd/tU
고리 1	15	52,000
고리 2	15	43,000
고리 3, 4 영광 1, 2	18	35,000
울진 1, 2	18	53,000
영광 3, 4, 5, 6 울진 3, 4	18	47,500

경수로 핵연료의 연소도가 증가함에 따라 핵분열생성물의 함량은 증가하게 되며, 핵분열생성물의 함량에 따라서 산화속도 및 분말 특성이 영향을 받게 되며, 따라서 건식 재가공 핵연료 소결체 제조 특성에도 영향을 줄 수 있다. 본 연구에서는 고방사성의 실제 사용후 핵연료를 사용한 실험을 수행하기 전에 실제 사용후 핵연료를 모사한 모의 사용후 핵연료를 사용하여 실험을 수행하였다. 모의 사용후핵연료는 농축우라늄 대신에 천연우라늄, 핵분열생성물 대신에 산화물 시약을 사용하여 제조한다. 본 연구에서는 60,000 MWd/tU의 고연소도 핵연료 제조 실험과 병행하여 35,000 MWd/tU 연소도의 모의 사용후핵연료를 제조하여 분말 특성을 비교 분석하고 소결체를 제조하여 연소도 변화에 따른 소결체 제조 특성을 분석하였다.

본 실험에서는 기존에 확립된 건식 재가공 핵연료 제조공정 조건을 이용하였다[2-4]. 모의 사용후핵연료 소결체를 분말화시키기 위해 3주기 산화/환원 공정인 OREOX 공정을 사용하였으며, 공정조건중 OREOX공정에서는 500℃에서 2 시간 산화, 700℃에서 7 시간 환원시키고, 성형압은 100 ~ 350 MPa 범위가 이용되었으며 성형체를 1700℃ 및 1750℃의 소결온도에서 소결하여 소결체를 제조하였다

2. 모의 고연소도 경수로 사용후 핵연료 소결체 제조

2.1 재료

고연소도 경수로 사용후핵연료를 이용한 건식 재가공 핵연료 제조 실험을 위해 2001년 5월에 울진 2호 원자력발전소에서 방출된 경수로 사용후핵연료 K23집합체의 M03 연료봉에서 추출된 핵연료를 사용하고 있다. K23 집합체의 평균 연소도는 52,300 MWd/tU이며 M03 연료봉의 평균 연소도는 58,000 MWd/tU를 나타냈다. M03 연료봉 중 연소가 균일한 고연소 부분을 실험에 사용하고 있으며, 사용된 핵연료의 평균 연소도는 65,000 MWd/tU이다. 그림 1은 K23-M03 연료봉의 연소도 분포를 보여준다.

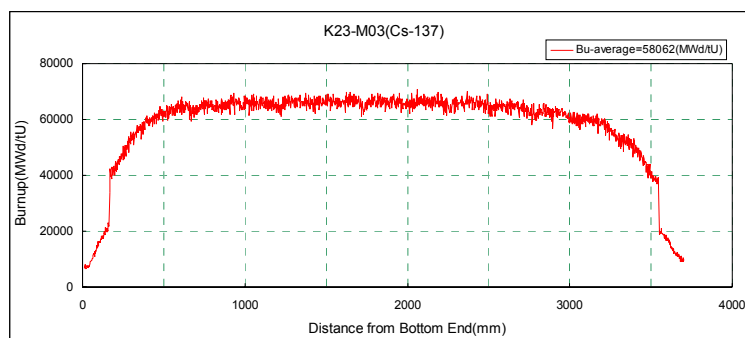


그림 1. K23-M03 경수로 사용후핵연료 연료봉 연소도 분포

본 실험에서는 이를 바탕으로 60,000 MWd/tU 연소도를 기준으로 경수로 사용후핵연료의 성분을 ORIGEN-2 코드로 분석하였다. 분석된 성분을 바탕으로 표 3과 같이 모의 사용후핵연료의 조성을 결정하였다. 고연소도 핵연료의 특성을 분석하기 위해 연소도 35,000 MWd/tU의 핵연료에 대한 제조 실험을 병행하였다.

표 3. 사용후핵연료 핵분열생성물 종류 및 첨가량

Fission products	Surrogates	첨가량(g/1000g UO ₂)	
		35,000 MWd/tU (15년 냉각)	60,000 MWd/tU (방출)
Nd(Pr, Sm)	Nd ₂ O ₃	6.6945	11.4644
Zr	ZrO ₂	4.7803	8.3087
Ce(Pu, Np)	CeO ₂	9.1126	16.0936
Mo	MoO ₃	4.7826	8.5714
Ru(Tc)	RuO ₂	3.8053	7.3036
Ba	BaCO ₃	2.5228	3.7251
Pd	PdO	1.5200	2.8590
La	La ₂ O ₃	1.8405	2.4819
Sr	SrO	0.8414	1.8098
Te	TeO ₂	0.5628	1.0526
Y	Y ₂ O ₃	0.5597	1.0195
Rh	Rh ₂ O ₃	0.5255	0.6178

2.2 소결체 제조

모의 핵분열생성물을 산화물 상태로 UO₂ 분말(ADU, 평균입도 : 2.91 μ m)에 첨가하여 일련의 핵연료 제조공정인 분쇄, 혼합, 성형, 소결 공정을 통해 모의 경수로 사용후핵연료 소결체를 제조하였다. 300 MPa 성형한 성형체를 Ar-4%H₂ 분위기에서 1700℃에서 6시간 소결하여, 연소도 35,000 MWd/tU의 경우에는 10.45 g/cm³, 연소도 60,000 MWd/tU의 경우에는 10.46 g/cm³ 소결밀도를 가진 모의 경수로 사용후핵연료 소결체를 제조하고 본 실험에 사용하였다.

3. 모의 건식 재가공 핵연료 제조

3.1 분말 처리

평균 연소도 35,000 MWd/tU 및 60,000 MWd/tU의 경수로 사용후핵연료를 모사한 모의 사용후핵연료 소결체를 OREOX 공정 등 건식 재가공 핵연료 제조 공정을 이용하여 모의 건식 재가공 핵연료 소결체를 각각 제조하고 특성을 분석하였다.

모의 경수로 사용후핵연료 소결체를 산화온도 500 ℃의 공기분위기에서 2 시간, 환원온도 700 ℃의 Ar-4%H₂ 분위기에서 7 시간의 OREOX 공정을 3회 수행하여 건식 재가공 핵연료 분말을 제조하였다. 승온 및 감온시는 Ar 가스를 사용하였으며 승온 및 감온 속도는 4℃/min이다. 최종단계에서는 안정화처리를 위해 Ar-2%O₂ 가스로 4 시간 동안 처리하였다. OREOX 공정을 거친 분말에 대해 attrition 밀링 장치를 사용하여 150 rpm으로 15분간 밀링하였다. 밀링에는 직경 5mm의 지르코니아 볼을 사용하였으며 볼/분말의 무게비는 40으로 하였다. 분말의 입자 크기는 laser particle size analyzer(Malvern), 비표면적은 BET법을 이용하여 측정하였다.

3.2 성형 및 소결

밀링 분말의 성형성을 향상시키기 위하여 0.2 wt%의 Zn stearate를 혼합하고 일축의 유압 압분기로 100~350 MPa의 압력을 가하여 성형체를 제조하였다. 1700℃ 및 1750℃의 Ar-4%H₂ 분위기에서 6시간 소결하여 소결체를 제조하였다.

4. 건식 재가공 핵연료 특성 분석

4.1 분말 밀도 특성

OREOX 처리 분말의 입자는 각진(angular) 형태를 보이며, 따라서 분말의 충전성 및 성형성이 저하된다. 그러나 밀링에 의해서 겉보기 밀도 및 탭밀도는 크게 증가하였다. 분말처리 조건에 따른 분말 특성은 표 4와 같다. OREOX 분말의 비표면적은 연소도 60,000 MWd/tU 분말이 연소도 35,000 MWd/tU 분말에 비해 다소 높게 나타났으며 밀링에 의해서 크게 증가하였다. 밀링 분말의 비표면적은 천연 UO₂(ADU분말)의 비표면적(5.27 m²/g)보다 높은 값을 나타냈다. 따라서 분말을 밀링공정으로 미분쇄함으로써 소결성이 향상된 분말을 얻을 수 있었다.

표 4. 연소도에 따른 분말 특성

특성	35,000 MWd/tU		60,000 MWd/tU	
	OREOX 분말	밀링 분말	OREOX 분말	밀링 분말
평균입자크기 (μm)	7.6	0.6	6.3	0.7
비표면적 (m ² /g)	4.55	5.38	4.84	6.21
겉보기밀도 (g/cm ³)	0.71	1.63	0.72	1.95
탭밀도 (g/cm ³)	1.87	3.05	1.83	3.12

4.2 최종 성형체 특성

최종 성형 압력은 100~350 MPa 범위에서 50 MPa 씩 증가시켜 설정하였으며 성형압력이 증가하면 성형체의 밀도도 증가하는 경향을 보여주었다. 성형압에 따른 성형밀도는 연소도 60,000 MWd/tU의 경우에는 51~57%로 연소도 35,000 MWd/tU의 54~59%보다 약간 낮은 값을 나타냈다. 이는 60,000 MWd/tU 분말의 비표면적이 다소 높은 값을 나타내 성형 중 입자간의 상호 마찰 작용으로 성형체의 밀도가 저하된 것으로 사료된다.

4.3 소결체 특성

연소도 60,000 MWd/tU의 경우, 1700℃ 및 1750℃에서 6시간 소결하여 제조된 소결체는 성형압의 증가에 따라 이론밀도의 95~98 % 범위의 소결밀도를 나타냈다. 그림 2는 성형압이 증가에 따른 소결체의 밀도 변화를 보여준다. 연소도 35,000 MWd/tU의 경우, 제조된 소결체는 이론밀도의 95~97 % 범위의 소결밀도를 나타내, 연소도 60,000 MWd/tU의 경우와 유사하거나 다소 낮은 값을 나타냈다. 연소도 27,000 MWd/tU의 실제 사용후핵연료를 3회 OREOX 처리된 분말로 제조된 소결체는 이론밀도의 94.9 ~ 95.5 % 범위의 소결밀도를 나타낸 바 있다[5]. 연소도 60,000 MWd/tU의 경우, 5~6 μm 범위 평균 결정립 크기를 나타냈다. 그림 3은 제조된 소결체의 결정립 구조를 보여준다. 연소도 35,000 MWd/tU의 경우, 7 μm 의 평균 결정립 크기를 나타내 유사한 결과를 나타냈다. 실험결과, 고연소도의 사용후핵연료에 대해서도 3주기 OREOX 공정등 건식 재가공 핵연료 소결체 제조공정 조건을 적용하여 재가공 핵연료 소결체를 제조할 수 있는 가능성을 확인하였으며 결정립 크기를 다소 증가시키기 위해 Nb_2O_5 등의 첨가제를 사용하여 건식 재가공 핵연료 소결체 제조공정을 개선하고 실제 사용후핵연료를 이용한 실험에 적용할 필요가 있을 것으로 사료된다.

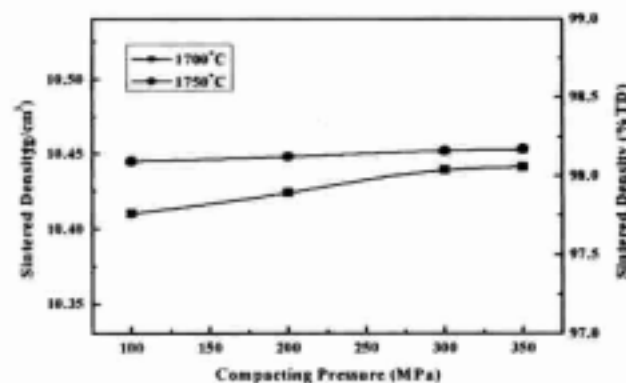


그림 2. 모의 건식 재가공 핵연료 소결체 밀도

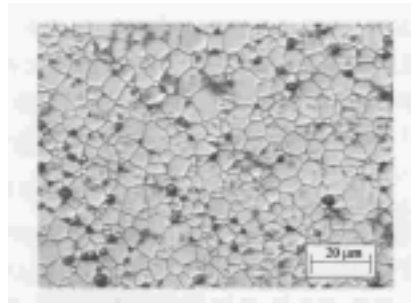


그림 3. 모의 건식 재가공 핵연료 소결체의 결정립 구조

4. 결 론

본 연구에서는 60,000 MWd/tU의 고연소도를 모사한 모의 사용후핵연료를 제조하고 산화와 환원이 3회 반복되는 OREOX 분말처리 공정 등 건식 재가공 핵연료 제조 공정을 적용하여 모의 건식 재가공 핵연료 소결체를 제조하였다. 제조된 소결체의 소결밀도는 이론밀도의 95~98% 범위를 나타냈으며 평균 결정립 크기는 5~6 μ m 범위를 나타냈다. 이론밀도를 기준으로 한 소결밀도의 경우, 연소도 35,000 MWd/tU의 핵연료보다 다소 높은 값을 나타냈으며 평균 결정립 크기는 유사하였다. 소결밀도는 만족한 수준이었으며 결정립 크기는 다소 낮은 값을 나타내 결정립 크기를 증가시키기 위해 Nb₂O₅ 등의 첨가제를 사용하여 건식 재가공 핵연료 소결체 제조공정을 개선하고 실제 사용후핵연료를 이용한 실험에 적용할 계획이다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

- [1] [http://www.kntc.re.kr/Cyberserver/openlec/nuke\(1\)/nuclear5/content5-3.html](http://www.kntc.re.kr/Cyberserver/openlec/nuke(1)/nuclear5/content5-3.html)
- [2] 양명승 등, DUPIC 핵연료제조 및 공정기술 연구, 한국원자력연구소, KAERI/TR-1336/99, 1999. 6
- [3] 김웅기 등, DFDF에서의 DUPIC 핵연료 소결체 제조 특성, 한국원자력연구소, KAERI/TR-2005/2002, 2002. 1
- [4] 이재원 등, 모의 사용후핵연료를 이용한 건식재가공핵연료 분말제조 공정개선 연구, 한국원자력학회 2003 춘계학술발표회 논문집, 2003. 5
- [5] 김웅기 등, 중수로 원전용 건식재가공핵연료 소결체 제조, 한국자원리사이클링학회 2003 춘계학술발표회 논문집, pp.136-139, 2003. 5