

## 건식 재가공 핵연료 소결체 제조를 위한 분말제조공정 개선 연구

### A Study on the Improvement of Powdering Process for Fabrication of Dry Recycling Nuclear Fuel Pellets by using Spent PWR fuel

김웅기, 이재원, 박근일, 김수성, 이정원, 이도연, 정정환, 양명승

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요 약

경수로 사용후핵연료를 이용하여 건식 재가공 핵연료(DUPIC ; Direct Use of spent PWR fuel In CANDU reactor) 소결체를 제조하기 위한 분말처리공정에서 기존에는 산화와 환원이 3회 반복되는 OREOX 공정을 적용하고 있다. 본 연구에서는 분말제조공정을 효율적으로 개선하기 위해 산화와 환원이 1회만 수행되는 OREOX 공정을 적용하여 건식 재가공 핵연료 소결체 제조 실험을 수행하였다. 실험결과 1800℃의 소결온도에서 10시간 소결하여 10.15~10.22 g/cm<sup>3</sup>(이론밀도의 93.8~94.5 %)의 소결밀도를 가진 소결체를 제조하였으며 1850℃에서 7시간 재소결함으로써 10.27~10.33 g/cm<sup>3</sup>(이론밀도의 94.9~95.5 %)의 향상된 소결밀도를 가진 소결체를 제조하였다.

#### Abstract

3 cycle OREOX process has been currently adopted to fabricate DUPIC(Direct Use of spent PWR fuel In CANDU reactor) pellets by using spent PWR fuel. In this study, 1 cycle OREOX process was performed to improve powdering process of DUPIC pellet manufacturing processes. As the results of experiments, the sintered densities of pellets sintered at 1800 °C for 10 hours ranged from 10.15 g/cm<sup>3</sup>(93.8 % of T.D.) to 10.22 g/cm<sup>3</sup>(94.5 % of T.D.). The pellets were sintered again to increase the sintered density. The sintered densities of pellets re-sintered at 1850 °C for 7 hours ranged from 10.27 g/cm<sup>3</sup>(94.9 % of T.D.) to 10.33 g/cm<sup>3</sup>(95.5 % of T.D.).

## 1. 서론

건식 재가공 핵연료 주기기술을 개발하기 위해 2000년 4월부터 핫셀에서 건식 재가공 핵연료를 제조하였으며 경수로 사용후핵연료를 탈피복 공정과 산화/환원 공정인 OREOX 공정을 거쳐 핵연료 원료 분말로 건식 재가공할 수 있는 기술을 확립하였다[1-3].

경수로 사용후핵연료를 이용하여 건식 재가공 핵연료(DUPIC ; Direct Use of spent PWR fuel In CANDU reactor) 소결체를 제조하기 위한 분말처리공정에서 기존에는 산화와 환원이 3회 반복되는 OREOX 공정을 적용하고 있다. OREOX 공정은 사용후핵연료 소결체를 고온에서 산화와 환원 과정으로 열처리하여 소결이 가능한 분말로 재가공하는 공정으로 건식재가공핵연료 제조공정중 핵심 공정이다. 그러나 3회 OREOX 공정의 경우 37 시간 이상이 소요되고 있다[1-3].

분말제조공정을 효율적으로 개선하기 위해 산화와 환원이 1회만 수행되는 OREOX 공정이 연구되고 있으며, 모의 사용후핵연료를 사용하여 1회 OREOX 공정으로 이론 밀도의 95 % 이상되는 소결체를 제조한 바 있다[4]. 이를 바탕으로 본 연구에서는 핫셀에서 경수로 사용후핵연료를 사용하여 1회 OREOX 공정을 적용하여 성형압 등의 제조공정 조건을 변화시키면서 건식 재가공 핵연료 소결체를 제조하고 특성을 분석하였다. 공정조건 중 OREOX공정에서는 500℃에서 3 시간 산화, 700℃에서 5 시간 환원시키고, 성형압은 124 ~ 186 MPa 범위가 이용되었다. 1800℃의 소결온도에서 10시간 소결하여 소결체를 제조하였으며 소결밀도를 향상시키기 위하여 1850℃에서 7시간 재소결하였다.

## 2. 건식 재가공 핵연료 제조

### 2.1 재료

건식 재가공 핵연료 제조를 위해 1986년 10월에 고리발전소에서 방출된 경수로 사용후 핵연료 G23집합체의 C13A 연료봉에서 추출된 핵연료를 사용하였다. 사용된 핵연료의 평균 연소도는 27,000 MWd/tU이다.

### 2.2 분말처리

원료분말을 산화온도 500 ℃에서 3 시간, 환원온도 700 ℃에서 5 시간의 OREOX 공정을 1회 수행하여 건식 재가공 핵연료 분말을 제조하였다. OREOX 공정을 거친 분말에 대해 450/600 rpm의 회전속도로 각각 10 분간 attrition 밀링을 수행하였다. 밀링 분말의 성형성을 향상시키기 위하여 0.4 wt%의 Zn stearate를 혼합하고 유동성 및 충전율을 높이기 위하여 62 MPa로 예비압분한 후에 조립화(mesh 18)시켜 분말을 제조하였다.

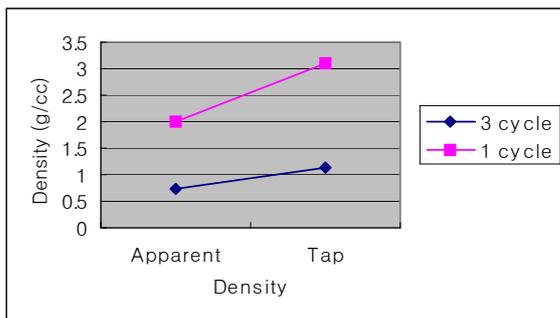
## 2.3 성형 및 소결

공정조건중 성형압은 124 ~ 186 MPa 범위가 이용되었다. 1800°C의 Ar-4%H<sub>2</sub> 분위기에서 10시간 소결하여 소결체를 제조하였으며 소결밀도를 향상시키기 위하여 1850°C에서 7시간 재소결하였다. 제조된 소결체를 무심연마기에서 건식연마하여 소결체 직경 및 표면거칠기를 조정하였다.

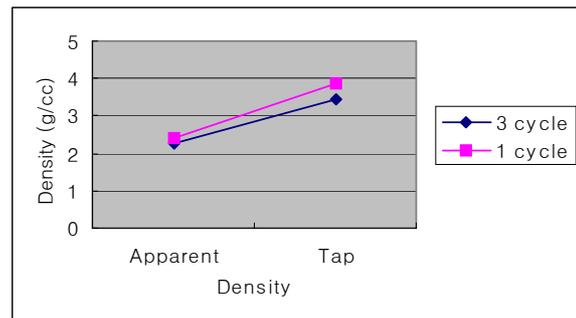
## 3. 건식 재가공 핵연료 특성 분석

### 3.1 분말 밀도 특성

분말 밀도 측정 결과는 그림 1과 같다. 그림 1 a)는 OREOX 공정 후에 측정된 겉보기 밀도와 탭밀도를 나타내고 그림 1 b)는 밀링 후에 측정된 분말 밀도를 보여준다. OREOX 공정 후 겉보기 밀도는 2.00 g/cm<sup>3</sup>, 탭밀도는 3.11 g/cm<sup>3</sup>를 나타냈고 밀링 후에 겉보기 밀도는 2.40 g/cm<sup>3</sup>, 탭밀도는 3.89 g/cm<sup>3</sup>를 나타냈다. 3회 OREOX 공정으로 처리된 분말의 경우에는 OREOX 공정 후 겉보기 밀도는 0.75 g/cm<sup>3</sup>, 탭밀도는 1.15 g/cm<sup>3</sup>를 나타냈고 밀링 후에 겉보기 밀도는 2.28 g/cm<sup>3</sup>, 탭밀도는 3.45 g/cm<sup>3</sup>를 나타냈다. 1회 OREOX 공정으로 처리된 분말의 경우 3회 OREOX 공정으로 처리된 분말에 비해 분말화가 덜 진행되어 OREOX 공정 직후에는 3 배 정도의 높은 분말밀도를 나타냈지만 밀링공정 후에는 10 % 큰 값을 나타냈을 뿐이다. 이는 밀링 공정으로 미분쇄 효과에 의해 분말 특성을 개선시켰음을 보여준다.



a) OREOX 공정 후 분말밀도



b) 밀링 공정 후 분말 밀도

그림 1. 건식 재가공 핵연료 분말 밀도

### 3.2 예비압분체 특성

건식 재가공 핵연료 예비압분체의 특성을 분석하기 위하여 압분체의 기하학적 밀도를

측정하였다. 측정결과 예비압분체의 밀도는  $6.20 \text{ g/cm}^3$ 를 나타냈다. 3회 OREOX 처리된 분말로 제조된 예비압분체는  $6.00 \sim 6.10 \text{ g/cm}^3$  범위를 나타낸 바 있다. 1회 OREOX 처리된 분말의 경우 분말 밀도와 마찬가지로 예비압분체의 밀도가 3회 OREOX 처리된 분말로 제조된 예비압분체의 밀도보다 다소 큰 값을 나타냈다.

### 3.3 최종 성형체 특성

최종 성형 압력은  $124 \sim 186 \text{ MPa}$ 로 설정하였으며  $124 \text{ MPa}$ ,  $155 \text{ MPa}$ ,  $186 \text{ MPa}$ 의 압력에서 성형된 성형체의 기하학적 밀도는 각각  $6.66 \text{ g/cm}^3$ ,  $6.77 \text{ g/cm}^3$ ,  $6.82 \text{ g/cm}^3$ 를 나타냈다. 그림 2는 성형 압력에 따른 성형체의 밀도를 보여준다. 성형압력이 증가하면 성형체의 밀도도 증가하는 경향을 보여주었다. 3회 OREOX 처리된 분말로 제조된 성형체는  $6.52 \text{ g/cm}^3$ 를 나타낸 바 있다. 1회 OREOX 처리된 분말의 경우 분말밀도 및 예비압분체와 마찬가지로 성형체의 밀도가 3회 OREOX 처리된 분말로 제조된 성형체의 밀도보다 다소 큰 값을 나타냈다.

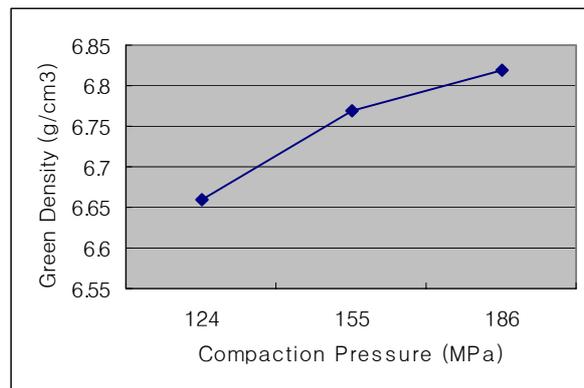


그림 2. 건식 재가공 핵연료 성형체 밀도

### 3.4 소결체 특성

#### 3.4.1 성형압의 변화에 따른 소결체 밀도

그림 3은  $124 \text{ MPa}$ 로부터  $186 \text{ MPa}$ 까지 성형압이 증가함에 따른 소결체의 밀도 변화를 보여준다.  $1800^\circ\text{C}$ 에서 10시간 소결하여 제조된 소결체는 성형압의 증가에 따라  $10.15 \sim 10.22 \text{ g/cm}^3$ (이론밀도의 93.8 ~ 94.5 %) 범위의 소결밀도를 나타냈다. 소결밀도를 향상시키기 위하여 소결온도를  $1850^\circ\text{C}$ 로 증가시키고 7시간 재소결하였다. 재소결한 소결체는  $10.27 \sim 10.33 \text{ g/cm}^3$ (이론밀도의 94.9 ~ 95.5 %)의 향상된 소결밀도를 나타냈다. 3회 OREOX 처리된 분말로 제조된 소결체는  $10.28 \sim 10.38 \text{ g/cm}^3$ (이론밀도의 94.9 ~

95.5 %) 범위의 소결밀도를 나타낸 바 있다[5]. 1회 OREOX 처리된 분말의 경우 3회 OREOX 처리된 분말보다 분말 크기가 크고 비표면적이 작기 때문에 소결성이 낮아 소결 밀도가 작은 값을 나타냈지만 고온에서의 재소결공정으로 3회 OREOX 처리된 분말로 제조된 소결체의 소결밀도에 근접한 값을 얻을 수 있었다.

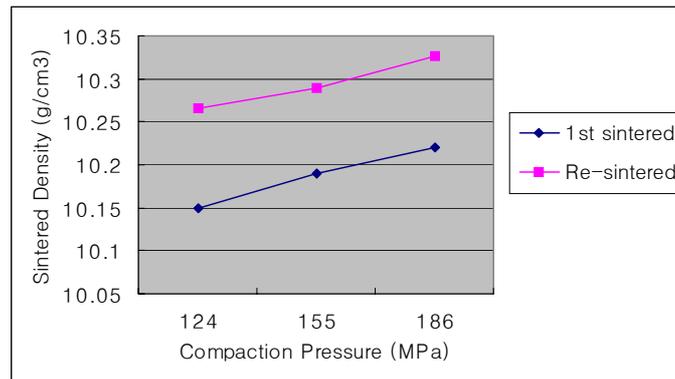


그림 3. 건식 재가공 핵연료 소결체 밀도

### 3.4.2 연삭체 검사

건식연삭 공정으로 가공된 연삭체의 직경과 표면조도를 측정된 결과, 12.184 ~ 12.190 mm 범위의 직경과 Ra 0.52 ~ 0.69  $\mu\text{m}$  범위의 표면조도를 나타냄으로써 중수로원전용 핵연료의 연삭체 제조사양(12.180 ~ 12.200 mm 범위의 직경과 Ra 0.8  $\mu\text{m}$  이하 범위의 표면조도)을 만족하였다. 연삭체의 표면결함을 검사한 결과 186 MPa 이상의 성형압에서는 연삭체의 상단부에서 end-capping 결함이 일부 존재하였다. 따라서 표면결함이 없는 건전한 연삭체 제조를 위해서는 성형압을 일정한 수준 이하로 유지할 필요가 있다.

## 4. 결 론

평균 연소도 27000 MWd/tU의 경수로 사용후핵연료를 사용하여 핫셀에서 산화와 환원이 1회만 수행되는 OREOX 공정을 적용하여 건식 재가공 핵연료 소결체 제조 실험을 수행하였다. 실험결과 1800°C의 소결온도에서 10시간 소결하여 10.15 ~ 10.22 g/cm<sup>3</sup>의 소결밀도를 가진 소결체를 제조하였으며 1850°C에서 7시간 재소결함으로써 10.27 ~ 10.33 g/cm<sup>3</sup>의 향상된 소결밀도를 가진 소결체를 제조하였다. 1회 OREOX 공정으로 처리된 분말의 경우 3회 OREOX 공정으로 처리된 분말보다 분말 크기가 크고 비표면적이 작기 때문에 소결성이 낮아 소결밀도가 작은 값을 나타냈지만 고온에서의 재소결 공정으로 3

회 OREOX 공정으로 제조된 소결체의 소결밀도에 근접한 값을 얻을 수 있었다. 앞으로 밀링 공정을 개선하고  $TiO_2$  등의 첨가제를 사용하여 소결온도를 낮추고 소결 시간을 단축켜 1회 OREOX 공정을 적용한 효율적인 건식 재가공 핵연료 소결체 제조공정을 개발할 계획이다.

## 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

## 참고문헌

- [1] 양명승 등, DUPIC 핵연료제조 및 품질관리기술 개발, 한국원자력연구소, KAERI/RR-1744/96, 1997. 9
- [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