2001 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

DUPIC 핵연료 소결체 제조 특성
Characteristics of the DUPIC Fuel Pellets

김웅기, 김수성, 이정원, 김종호, 강권호, 양명승

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

DUPIC(Direct Use of spent PWR fuel In CANDU reactor) 핵연료 주기기술을 개발하기 위해 1986년에 고리 1호기에서 방출된 G23 경수로 사용후핵연료 집합체를 사용하여 1999년 4월부터 핫셀에서 DUPIC 핵연료를 제조하고 있다. 경수로 사용후핵연료를 산화.환원 공정으로 분말처리하여 제조된 DUPIC 핵연료 원료 분말을 이용하여 경수로 사용후핵연료의 연소도, 소결체 제조공정 중 성형압, 소결온도, 소결시간 등의 제조공정 변수를 변화시키면서 DUPIC 핵연료 소결체를 제조하고 제조특성을 분석하였다. 방사능이 매우 높은 DUPIC 소결체를 검사하기 위해 핫셀에서 원격 조작이 가능한 검사장비를 개발하였으며 개발된 장비를 이용하여 핫셀에서 제조된 DUPIC 소결체의 물성을 검사하였다. 실험결과 10.01~10.43 g/cm^3 의 소결밀도, 7.26~9.48 μm의 평균 결정립 크기 및 Ra 0.8μm 이하의 표면조도를 가진 중수로용 DUPIC 핵연료 소결체를 원격으로 제조할 수 있었다. 분석결과 성형압을 증가시킴에 따라 소결밀도는 증가하였으나 소결체표면에 미세균열발생 빈도가 증가하는 경향을 얻었다. 분석결과를 이용하여 DUPIC 핵연료 제조 공정을 개선, 확립하고 하나로에서 수행할 조사시험용 DUPIC 핵연료를 제조하였다.

Abstract

Since April 1999, DUPIC fuel has been fabricated using the spent PWR fuel assembly G23 released from the nuclear power plant Kori 1 in 1986 to develop DUPIC(Direct Use of spent PWR fuel In CANDU reactor) fuel cycle technology. Using DUPIC powder prepared by the oxidation and reduction processes, the DUPIC fuel pellets are fabricated and characterized in association with the process parameters such as the burn-up of spent fuel, compaction pressure, sintering termprature, and sintering time. The inspection systems were developed to remotely inspect high-radioactive DUPIC pellets at hot cell. As a result of the experiment, DUPIC pellets with 10.01~10.43 g/cm^3 of sintered density, 7.26~9.48μm of averaged grain size, and less than Ra 0.8μm of surface roughness have been remotely fabricated at hot cell.

As the compaction pressure has been increased, the sintered density has been higher, but there have been some micro-cracks. The optimum DUPIC process has been confirmed based on the results of the experiment. The DUPIC pellets for the irradiation test at HANARO reactor were successfully fabricated under the optimized DUPIC processes.

1. 서 론

경수로 사용후핵연료를 중수로 핵연료로 재사용하기 위한 DUPIC(Direct Use of spent PWR fuel In CANDU reactor) 핵연료 주기기술을 개발하기 위해 1986년에 고리 1호기에서 방출된 G23 사용후핵연료 집합체를 이용하여 1999년 4월부터 핫셀에서 DUPIC 핵연료를 제조하고 있다. 경수로 사용후핵연료는 탈피복 공정과 산화.환원 공정을 거쳐 DUPIC 핵연료 원료 분말로 재가공되며 분말처리된 DUPIC 핵연료 원료 분말을 이용하여 경수로 사용후핵연료의 연소도, 소결체 제조공정중 압분체의 압분압력, 소결온도, 소결시간 등의 제조공정 변수를 변화시키면서 DUPIC 핵연료 소결체를 제조하였으며 중수로핵연료 검사항목을 기준으로 DUPIC 소결체의 밀도, 표면조도, 칫수, 표면결함, 결정립크기, 화학조성 등을 검사하고 DUPIC 핵연료의 물성을 분석하였다.[1] 방사능이 매우 높은 DUPIC 소결체를 검사하기 위해 핫셀에서 원격 조작이 가능한 검사장비를 개발하였으며 개발된 장비를 이용하여 핫셀에서 제조된 DUPIC 소결체를 검사하였다. 실험결과 10.01~10.43 g/cm^3(35000MWd/tU 핵연료 기준으로 계산하여 적용한 이론밀도 10.75 g/cm^3 의 93.12~97.02 %) 범위의 소결밀도, 7.26~9.48 μm의 평균 결정립 크기 및 Ra 0.8 μm 이하의 표면조도를 가진 중수로용 DUPIC 핵연료 소결체를 제조하였다. 이 결과를 이용하여 제조공정 조건을 개선하고 DUPIC 핵연료 제조 공정을 확립하였으며 하나로에서 조사시험할 DUPIC 핵연료를 제조하였다.

2. DUPIC 핵연료 제조

경수로 사용후핵연료를 건식으로 재가공하여 중수로 핵연료를 제조하기 위한 DUPIC 핵연료 제조공정을 개발하기 위해 천연 UO_2와 모의 DUPIC 핵연료를 이용한 타당성 연구를 수행한 결과 OREOX 공정에 의해 사용후핵연료 분말의 소결성이 향상되는 것이 입증되었으며[2-4] 본 연구에서는 이들 결과를 바탕으로 실제 사용후핵연료를 이용하여 DUPIC 핵연료 소결체를 제조하였다. DUPIC 핵연료 소결체 제조공정은 그림 1과 같다.

2.1 재료

DUPIC 핵연료를 제조하기 위해 1986년에 고리 1호기에서 방출된 G23 경수로 사용후핵연료 집합체에 포함된 핵연료봉 중에서 연소도에 따른 특성을 분석하기 위해 C13A 연료봉, G2 연료봉 및 L2A 연료봉으로부터 사용후핵연료를 추출하였다. 각각의 핵연료봉으로부터 추출한 핵연료의 연소도를 감마스캐닝 방법으로 분석한 결과 각각 27000 MWd/tU, 35000 MWd/tU, 및 39600 MWd/tU 로 나타났다.

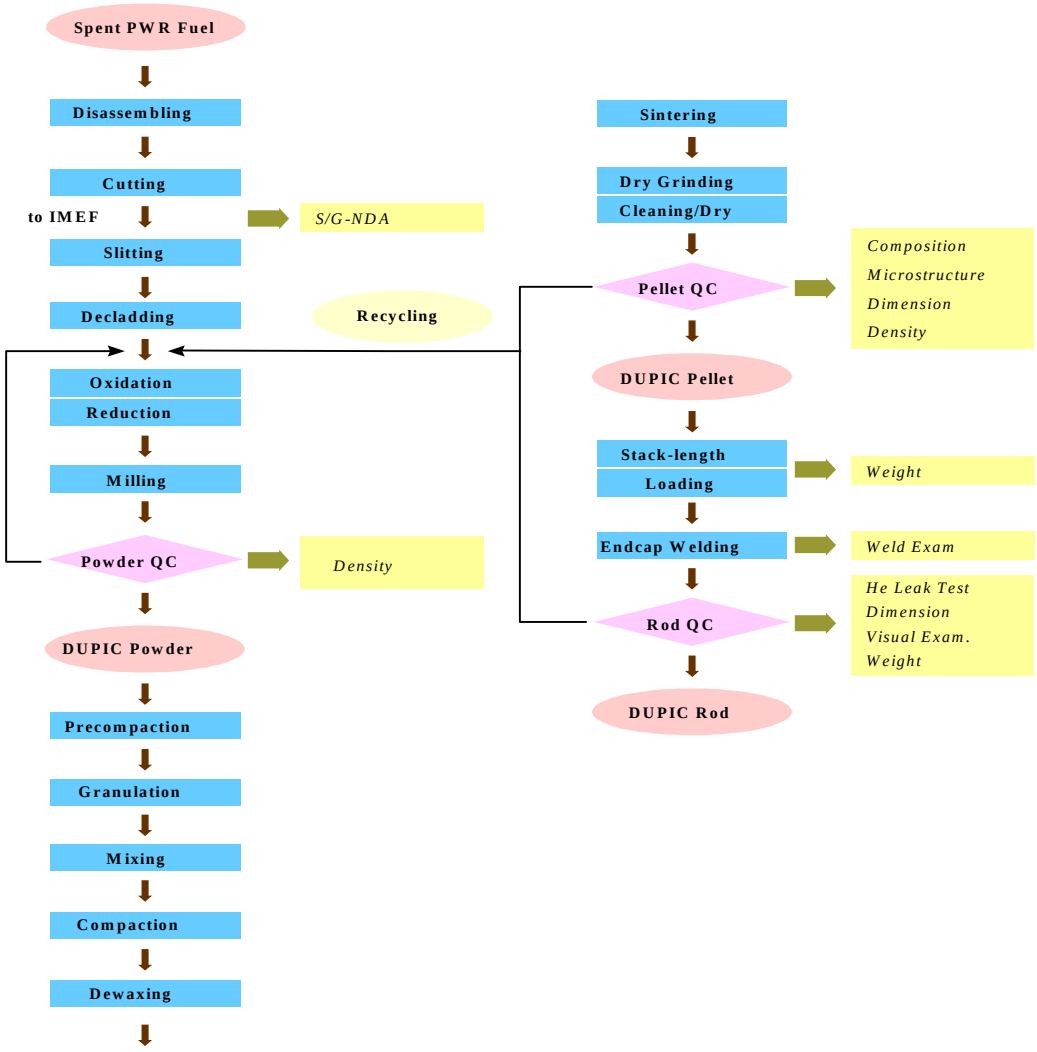


그림 1. DUPIC 핵연료 제조 공정

2.2 분말처리

경수로 사용후핵연료봉의 표면을 절개한 후에 산화공정을 통해 사용후핵연료 분말을 추출하고 산화온도 450 ℃, 환원온도 700 ℃의 OREOX 공정을 3회 수행하여 DUPIC 핵연료 원료 분말을 제조하였다. OREOX 공정을 거친 분말에 대해 450 rpm 및 600 rpm의 회전속도로 각각 10 분간씩 총 20분간 attrition 밀링을 수행하였다. 모의 DUPIC 핵연료에 대한 실험결과 건식 밀링 방법보다 습식 밀링 방법이 소결성을 향상시킨 것으로 보고되었지만[5] 본 연구에서는 핫셀에서의 실험 특성과 습식 방법의 민감성을 배제시키기 위해 건식 밀링방법만을 사용하였다. 밀링 분말의 성형성을 향상시키기 위하여 0.2~0.4 wt%의 Zn sterate를 혼합하고 유동성 및 충진율을 높이기 위하여 78 MPa로 예비압분한 후에 조립화(mesh 12)를 시켜 DUPIC 핵연료 원료분말을 제조하였다. 또한 제조된 DUPIC 소결체를 사용후핵연료와 같은 공정으로 분말처리하여 DUPIC 핵연료의 순환특성을 분석하였다.

2.3 성형 및 소결

118 ~ 392 MPa 의 압력으로 성형하였으며 1700 ℃ 또는 1750 ℃의 Ar-4%H_2 분위기에서 4~7 시간 소결하였다.

2.4 물성분석

분말의 물성이 성형 및 소결에 많은 영향을 미치기 때문에 분말에 대한 다양한 물성 분석이 요구되지만 핫셀에서의 물성 분석에 제한이 많아 겉보기 밀도와 탭밀도만을 측정하였다. OREOX 공정후의 분말과 밀링공정 후의 분말 밀도를 측정하고 분석하였으며 소결체의 물성은 분말처리, 성형압력, 소결온도, 소결시간에 따른 소결체의 밀도 변화와 표면결함, 결정립의 크기를 중심으로 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 DUPIC 핵연료 분말 물성

그림 2는 경수로 사용후핵연료의 연소도에 따른 DUPIC 핵연료 분말의 겉보기밀도와 탭밀도를 측정한 결과이다. OREOX 공정 후와 밀링 공정 후에 27000 MWd/tU 연소도를 가진 핵연료 분말의 밀도가 다소 높은 값을 나타냈지만 큰 차이는 나타나지 않았으며 OREOX 및 밀링 공정 후에 연소도에 따른 분말의 밀도 변화는 크지 않은 것으로 사료된다. 전반적으로 겉보기 밀도가 큰 경우 탭밀도도 큰 값을 나타냈으며 OREOX 후의 분말 밀도가 큰 경우 밀링 후에도 큰 값을 유지하였다. 따라서 OREOX 후의 겉보기밀도를 측정하면 탭밀도 및 밀링 후의 겉보기밀도와 탭밀도의 범위를 추정할 수 있다. 밀링후에는 분말의 미분쇄 효과에 의해 분말밀도가 100~200 % 증가하였다. 그림 3은 순환 주기 수에 따른 핵연료 분말의 밀도를 나타낸다. 순환주기 수 0은 처음으로 경수로 사용후핵연료를 원료로 사용한 경우이고 순환주기 수 1은 경수로 사용후핵연료를 원료로 제조된 DUPIC 소결체를 다시 원료로 사용한 경우이고 순환주기 수 2는 이 주기를 반복한 경우이다. 사용후핵연료가 재순환할 경우 OREOX 및 소결 공정에서 세슘 등의 기화성 물질이 일부 제거되는 효과가 나타나기 때문에 분말 물성 및 소결성에 변화가 나타나는 것으로 사료된다. 그림에서 볼 수 있듯이 재순환시킨 분말의 경우 OREOX 공정후에 재순환되지 않은 분말에 비해 약 60 % 이상 밀도가 증가하였다. 밀링 후에는 약 16 % 이상의 밀도 증가 효과가 나타났으며 밀링공정으로 균일한 물리적 특성을 가진 분말이 제조된 것으로 분석된다. 재순환된 분말은 재순환 주기수에 관계없이 유사한 분말밀도 특성을 나타냈다.

3.2 DUPIC 핵연료 소결체 물성

3.2.1 DUPIC 핵연료 소결체 화학 분석

35000 MWd/tU 연소도의 G2 핵연료로 제조된 DUPIC 핵연료 소결체 중에서 샘플을 채취하여 화학분석용 특수 핫셀에서 화학성분을 분석하였다. 분석한 결과는 표 1과 같다. 분석 가능한 성분의 종류가 제한적이었지만 분석결과 ORIGEN 계산값과 유사한 결과를 얻었다.

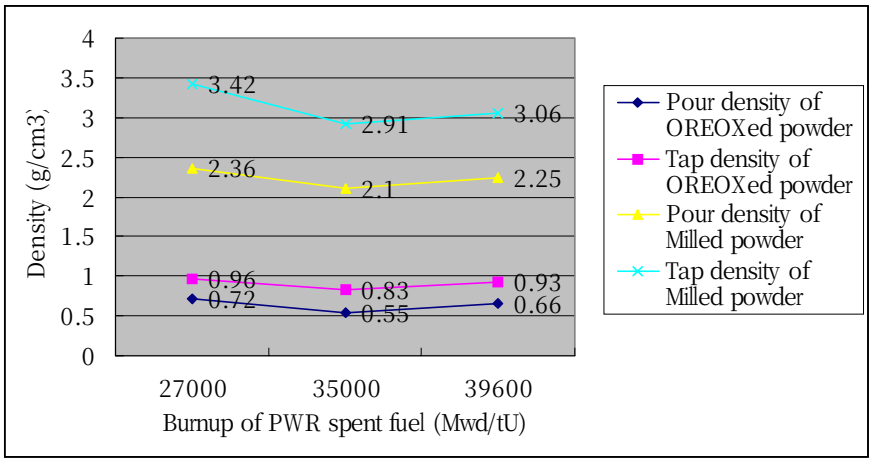


그림 2. 연소도에 따른 DUPIC 핵연료 분말 밀도

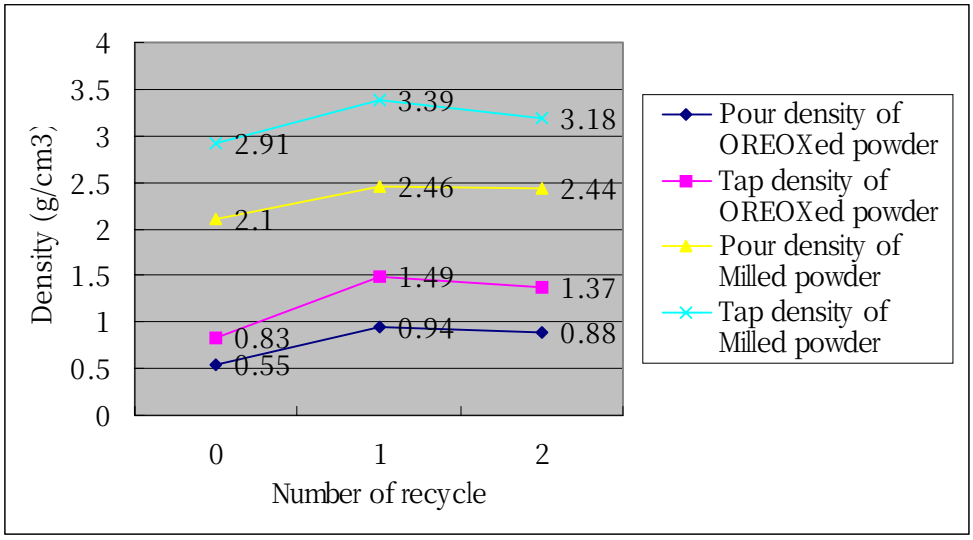


그림 3. 재순환에 따른 G23-G2 DUPIC 핵연료 분말 밀도

3.2.2 DUPIC 핵연료 소결체 미세조직

제조된 DUPIC 핵연료 소결체 중에서 연소도별로 각각 1 개의 소결체를 채취하고 소결체의 중앙을 수직으로 절단하여 조직검사용 샘플을 제조하였다. 샘플을 조직검사용 핫셀로 운송하여 검사할 표면을 연마하고 에칭하였으며 400 배율의 광학현미경으로 미세조직을 검사하였다. 그림 4는 DUPIC 핵연료의 미세구조를 나타낸 것이다. 교차 방식으로 측정된 평균결정립의 크기는 27000 Mwd/tU 핵연료의 경우 7.26 μm, 35000 Mwd/tU 핵연료의 경우 9.48 μm, 39600 Mwd/tU 핵연료의 경우 8.53 μm를 나타냈다. 35000 Mwd/tU 핵연료의 경우 재소결 공정을 거쳐 소결시간이 증가하여 결정성장이 이루어져 결정립의 크기가 증가한 것으로 사료된다.

표 1. DUPIC 핵연료 소결체 화학성분 분석

Element	함량 (mg/g sample)	상대표준편차 (RSD, %)
La	1.21	1.3
Nd	3.58	1.2
Sm	0.63	0.7
Eu	0.13	0.0
U 총량	821.1	0.22
U-234	0.0197 (wt%)	0.0026 (2σ)
U-235	0.7192 (wt%)	0.0054 (2σ)
U-236	0.3295 (wt%)	0.0032 (2σ)
U-238	98.9316 (wt%)	0.0069 (2σ)
Pu 총량	8.415	0.27
Pu-238	2.1956 (wt%)	0.0021 (2σ)
Pu-239	56.6637 (wt%)	0.0021 (2σ)
Pu-240	26.3664 (wt%)	0.0031 (2σ)
Pu-241	7.9364 (wt%)	0.0019 (2σ)
Pu-242	6.8378 (wt%)	0.0014 (2σ)

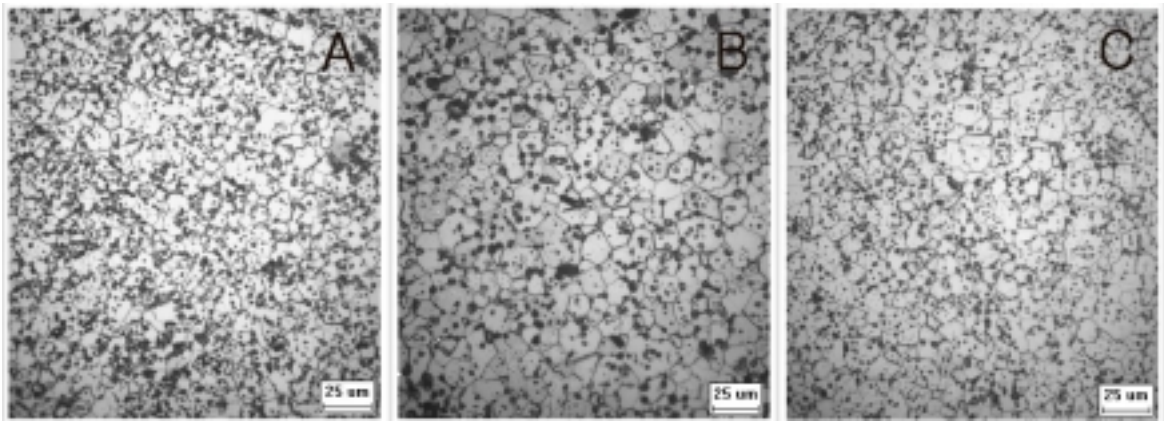


그림 4. DUPIC 핵연료 소결체 조직 사진(X400)
A) 27000 Mwd/tU B) 35000 Mwd/tU C) 39600 Mwd/tU

3.2.3 성형압력에 따른 DUPIC 핵연료 소결체 밀도

최대용량 620 g, 정밀도 0.001 g의 전자저울과 밀도측정용 장치를 이용하여 소결체의 침적밀도를 측정하였다. 그림 5는 35000 Mwd/tU 핵연료를 이용하여 1700 ℃, Ar-4%H_2 분위기에서 4시간 소결한 DUPIC 소결체의 경우 118 MPa에서 392 MPa로 성형압이 증가함에 따른 소결체의 밀도 변화를 보여준다. 성형압이 증가함에 따라 DUPIC 소결체의 밀도는 10.155 g/cm^3에서 10.429 g/cm^3로 증가하였다. 이와 같은 경향은 27000 Mwd/tU 핵연료와 39600 Mwd/tU 핵연료의 경우에도 유사하게 측정되었다. 따라서 사용후핵연료의 연소도에 관계없이 성형압이 증가함에 따라

소결밀도는 증가하는 것을 알 수 있다. 그림 6은 118 MPa 및 196 MPa의 성형압에 대해 1750 ℃, Ar-4%H_2 분위기에서 4시간 소결한 DUPIC 소결체의 연소도에 따른 밀도 변화를 나타낸다. 본 실험에서 같은 조건으로 분말처리된 핵연료의 경우 연소도의 증가에 따라 소결밀도가 증가하는 경향을 보여주었다. 고연소도 핵연료를 사용하여 성형압을 높게 설정한 경우 소결체의 소결밀도는 매우 증가한 반면 수평방향의 미세균열 발생 빈도수도 함께 증가하는 경향을 보였다.

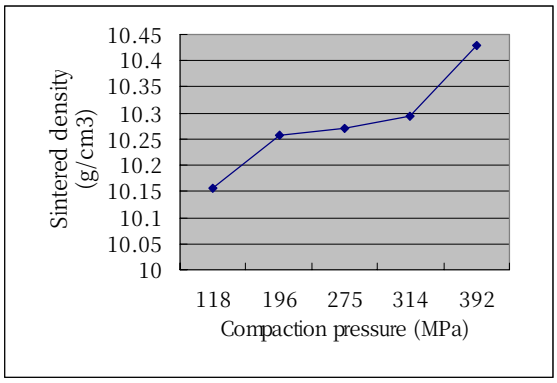


그림 5. 성형압력에 따른 소결체 밀도 특성

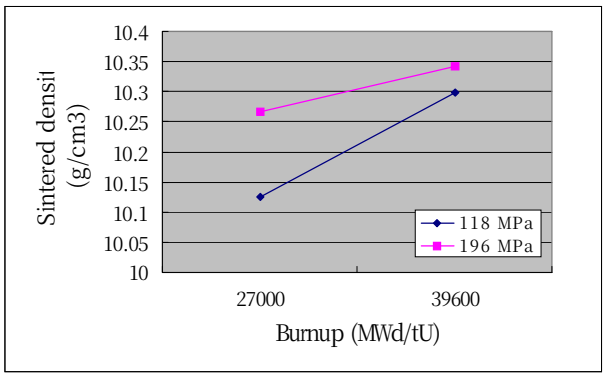


그림 6. 연소도에 따른 소결체 밀도 특성

3.2.4 성형압 유지 시간에 따른 DUPIC 핵연료 소결체 밀도 변화

그림 7은 35000 Mwd/tU 핵연료를 이용하여 1700 ℃, Ar-4%H_2 분위기에서 4시간 소결한 DUPIC 소결체의 경우 118 MPa 및 196 MPa의 성형압에 대해 성형압 유지시간에 따른 소결체의 밀도 변화를 보여준다. 성형압 유지시간이 낮은 경우 소결밀도가 감소하며 반대로 유지시간이 증가하면 소결밀도는 어느 정도 증가하지만 공정 진행속도가 떨어지는 단점이 있다. 실험결과 196 MPa 이상의 성형압 조건에서는 5초 이상 유지해도 소결밀도 증가 효과가 뚜렷하지 않아 유지시간을 5초로 설정하고 이후의 공정을 계속 진행하고 있다.

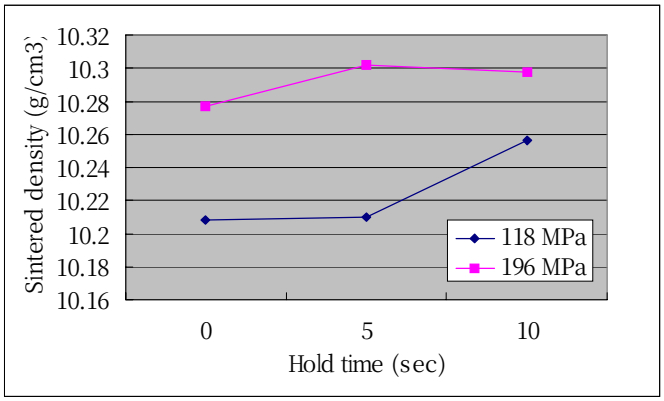


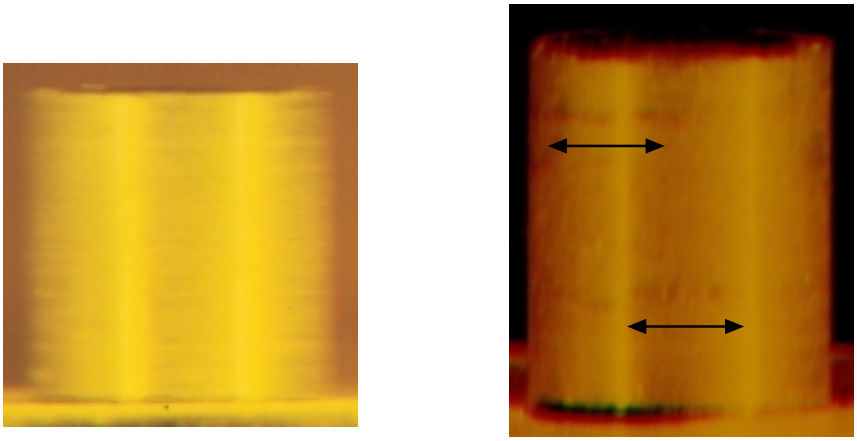
그림 7. 성형압 유지시간에 따른 소결체 밀도 특성

3.3 DUPIC 핵연료 연삭체 표면조도

DUPIC 핵연료 제조공정은 건식공정이므로 연삭 공정도 건식으로 이루어진다. 연삭공정 파라메타를 최적화하기 전에는 건식 연삭에 의해 Ra 0.88~1.29 μm 범위의 표면조도를 가진 소결체를 제조하였으나 현재는 연삭 공정이 최적화되어 Ra 0.8 μm 이하의 표면조도를 가진 핵연료를 제조하고 있다.

3.4 DUPIC 핵연료 연삭체 표면상태

그림 8은 제조된 DUPIC 소결체 연삭후 표면상태를 보여준다. 그림 8 (A)는 표면결함이 없는 핵연료 표면이며 그림 8 (B)는 원주방향의 수평 균열을 가진 핵연료 표면을 보여준다. 원주방향의 수평 균열은 성형압이 높은 경우에 발생되는 경향을 나타내고 있다.



(A) (B)

그림 8. 연삭된 DUPIC 소결체 표면 상태

A) 무결함 DUPIC 소결체 B) 수평방향 균열을 가진 DUPIC 소결체

4. 결 론

핫셀에서 원격 작업에 의해 27000, 35000, 및 39600 MWd/tU 의 연소도를 가진 경수로 사용후 핵연료를 탈피복 공정과 산화.환원 공정으로 처리하여 제조된 DUPIC 핵연료 원료 분말을 이용하여 중수로용 DUPIC 핵연료 소결체를 제조할 수 있음을 확인하였으며 물성분석결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- OREOX 공정을 통해 경수로 사용후핵연료를 분말처리하여 소결성을 향상시켜 중수로핵연료 소결체를 제조할 수 있음을 입증하였다.
- DUPIC 핵연료 분말의 겉보기 밀도가 큰 경우 탭밀도도 큰 값을 나타냈으며 OREOX 후의 분말 밀도가 큰 경우 밀링 후에도 큰 값을 유지하였다. 밀링후에는 100～200 % 밀도가 증가하였다.
- DUPIC 소결체를 다시 원료로 사용하는 재순환 공정에서 OREOX 공정후에 약 60 % 이상 밀도가 증가하였다. 밀링공정 후에는 약 16 % 이상의 밀도 증가 효과가 나타났다.
- 화학분석으로 주요 성분의 함유량을 분석하였으며 ORIGEN 계산값과 유사한 결과를 얻었다.
- 27000 MWd/tU 핵연료의 경우 7.26 μm, 35000 MWd/tU 핵연료의 경우 9.48 μm, 39600 MWd/tU 핵연료의 경우 8.53 μm의 DUPIC 소결체 평균결정립 크기를 얻었다.
- 성형압의 증가에 따라 DUPIC 소결체의 밀도는 증가하였다.
- 중수로핵연료의 표면조도 기준을 만족하는 핵연료를 제조할 수 있는 건식 연삭 공정을 개발하였다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

[1] 양명승 등, "중수로핵연료 품질관리지침서," (1988)
[2] 양명승 등, “핵연료제조 및 품질관리기술 개발,” KAERI/RR-1744/96, pp178-278, (1997)
[3] 양명승 등, "DUPIC 핵연료 제조장비 및 검사기기 개발," KAERI/TR-1319/99, 한국원자력연구소, pp.72-75, (1999)
[4] 이정원 등, “조사시험용 DUPIC 핵연료 소결체 제조보고서,” QR-00-02, (2000)
[5] 강권호 등, “모의 DUPIC 핵연료의 소결특성 연구,” 한국분말야금학회지, Vol.7, No.3, pp.123-130, (2000)