'2000 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

UO_2 분말을 이용한 DUPIC 핵연료 소결체 제조기술 및 공정변수 연구

A Study on the Fabrication Process and Process Parameters for DUPIC Fuel Pellets using UO_2 Powder

이정원, 민진영, 김웅기, 김종호, 나상호, 양명승

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

DUPIC 핵연료 제조를 위해 개발된 제조공정들의 흐름과 연계성, 제조기술의 검증, 그리고 시험장치의 성능 입증을 목적으로 천연 UO_2 분말을 사용해 조사재시험시설(IMEF) M6 핫셀에 설치된 DUPIC 핵연료 제조시험용 장치들을 이용해 소결체 제조실험을 하였다. Roll-compacting공정기술을 적용한 제조공정기술의 타당성 실험과 각 제조공정별 공정조건에 따른 분말 및 소결체의 특성을 분석하여 제조기술의 수립과 제조공정 조건을 확립하였다. 개발된 DUPIC 핵연료 제조공정기술로 UO_2 소결체를 분말화한 후 다시 소결하여 모의 DUPIC 소결체를 만들 수 있었다. 최종산물인 UO_2 소결체에서 육안검사 결과 결함은 없었으며, 소결체 밀도 95%TD, 입자크기 5.4㎛의 중수로용 핵연료 사양을 만족하는 UO_2 소결체를 제조할 수 있었으며, 이로써 DUPIC 핵연료 제조를 위한 일련의 제조공정기술이 검증되었다.

Abstract

For the performance evaluation of the DUPIC fuel fabrication technology, large-scale in-cell experiments were conducted using kilogram quantities of natural UO_2 powder and the equipment installed in the M6 hot cell at IMEF(Irradiated Material Examination Facility). As part of the fabrication process development, granulation was attempted with the roll-compacting technique, which is found unsuitable for remote operation in hot cell due to the sensitivity of the process parameters to the granule properties. In each experiments, the powders and pellets produced were characterized to investigate the relationship between the process parameters and the properties of the products. The UO_2-based DUPIC pellets having a sintered density of 95%TD (Theoretical Density) and average grain size of 5.4㎛, meeting CANDU specifications, were fabricated successfully. The process flow and process parameters to fabricate DUPIC pellets were established. Consequently the fabrication technology and the performance of the equipment developed for DUPIC fuel pellet were verified.

1. 서 론

사용후 경수로 핵연료를 재처리하지 않고 직접 중수로에 재 사용하고자 하는 경·중수로 연계핵연료 주기(DUPIC : Direct Use of spent PWR fuel in CANDU reactors) 기술개발을 위한 연구가 진행중에 있다[1,2]. 1993년 완료된 타당성 연구를 바탕으로 현재 실험적 검증연구를 수행중에 있으며, 이의 일환으로 사용후 경수로 핵연료를 사용한 DUPIC 핵연료 소결체 제조시험이 조사재시험시설 M6 핫셀(hot cell)에서 진행되고 있다. 이 시험은 사용후 경수로 핵연료를 출발물질로 사용하여 건식공정인 산화/환원공정을 통해 원료분말을 제조하고, 이 분말을 사용하여 DUPIC 소결체를 제조하게 된다. 이를 위해 핵연료 제조를 위한 일련의 제조기술들이 개발되어야 하고, 그 제조조건에 부합되는 성능을 가지는 제조장치 또한 개발되어야 한다. 특히 DUPIC 핵연료는 사용후 핵연료 물질을 취급해야 하는 특성상 고방사능 차폐시설인 핫셀에서 원격조작기인 메니퓰레이터(manipulator)로 모든 작업이 수행되어야 한다. 따라서 제조시험에 사용되는 시험장치와 제조기술에 대한 사전 검증시험은 이러한 특수 여건을 감안할 때 필수적인 것이다.

본 연구에서는 DUPIC 핵연료 제조를 위해 개발된 제조공정들의 흐름과 연계성, 제조기술의 검증, 그리고 시험장치들의 성능 입증을 목적으로 천연 UO_2 분말을 사용해 조사재시험시설 M6 핫셀에 설치된 DUPIC 핵연료 제조시험용 장치들을 이용해 실험하였다. 각 제조공정별 산물에 대해 실험조건별로 그 특성을 분석하였으며, 최종산물로 UO_2 소결체를 만들어 개발된 제조기술과 제조장치들의 성능을 검증하였다.

2. 실험 방법

2.1. 실험재료

시험에 사용된 원료분말은 캐나다 Cameco에서 ADU공법으로 제조된 천연 UO_2 분말로 평균입자크기 4.7㎛, 비표면적 5.3 ㎡/g, 그리고 O/U비가 2.11이었다.

2.2. 실험방법

실험에 사용된 장치는 Table 1과 같다. 이들 실험장치들은 DUPIC 핵연료 제조시험을 위해 이미 개발되어 조사재시험시설 M6 핫셀에 설치되어 있는 것으로 원격조작기인 메니퓰레이터에 의해 조작된다.

시험장치의 성능 입증과 제조공정기술의 검증을 목적으로 천연 UO_2 분말을 사용해 Fig. 1과 같이 roll-compacting 공정기술과 기존의 예비성형 공정기술을 각각 적용하여 UO_2 소결체를 제조하였다. 이때 각 공정별 실험조건은 Table 1과 같다. 그리고 제조된 UO_2 소결체를 사용해 그림 2와 같이 DUPIC 핵연료 제조흐름에 따라 모의 DUPIC 소결체를 제조하였으며, 그 제조조건은 Table 1과 같다. 얻어진 분말에 대해 밀도, 비표면적, O/U비 등 그 특성을 분석했으며, 최종산물인 소결체에 대해서도 칫수, 밀도, 입자크기 등을 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. Roll-compacting공정기술 적용시험

과립분말 제조를 위한 새로운 기술로 roll-compacting 공정기술을 적용해 순수 UO_2 분말로 과립분말을 만들어 압분, 소결하였다. Roll-compacting 기술은 통상의 압분프레스를 이용한 예비성형 대신에 회전하는 2개의 롤(roll) 사이에 분말을 공급하여 롤의 압착력으로 분말이 압분되는 기술로 기존의 압분프레스를 이용한 예비성형 공정기술보다 작업이 용이할 뿐만 아니라 과립화공정과 직접 연계할 수 있어 공정흐름을 줄일 수 있는 잇점이 있다. 이렇게 압분된 편상의 분말덩어리는 분쇄 및 screening 되어 일정 크기의 과립분말이 만들어지게 된다. Fig. 3(a)는 roll-compacting 공정에서 제조된 과립분말을 보여준 것이다. 최종압분 압력 210MPa, 235MPa, 260MPa 3종류의 압분체를 Ar-4%H_2의 환원성 분위기하 1700℃에서 4시간 소결하여 소결체를 제조하였다. 완성된 소결체는 Fig. 3(b)와 같이 압분압력에 관계없이 모든 소결체가 crack이 발생하였다. 그 주된 원인으로는 소결체를 절단, 연마한 후 광학현미경으로 관찰한 Fig. 4에서 보는 바와 같이, 사각형 모양의 입자들이 소멸되지 못하고 그대로 존재하는 데 기인한 것으로 보인다. 이들 사각형 모양의 입자는 roll-compacting 공정에서 2개의 롤 사이를 분말이 통과하면서 만들어진 편상의 분말입자로 판단되며 최종압분에서 가해진 압분압력보다 더 높은 압력으로 압착되어 최종압분 과정에서도 그 형상을 그대로 유지한 것으로 사료된다. 이는 2개의 롤 사이에 공급되는 분말의 양이 일정하지 못하고 또 분말이 압착되는 동안 롤 사이의 간격을 유지하는 힘이 일정하지 못하기 때문에 생기는 현상으로 판단된다. 따라서 분말 공급이 항상 일정하도록 하고 롤 사이 간격이 잘 유지되도록 한다면 개선될 것으로 보이나 DUPIC 핵연료 제조특성상 핫셀 내에서 원격조작으로 작업이 수행되어야 하기 때문에 분말의 일정 공급이 어려울 것으로 판단되어 roll-compacting 공정기술 대신에 기존의 압분프레스에 의한 예비성형 기술을 채택하였다.

3.2. UO_2 소결체 제조시험

예비성형 공정기술을 적용한 제조공정기술의 검증과 시험장치의 성능 입증을 목적으로 천연 UO_2 분말을 사용해 소결체 제조시험을 행하였다. 예비성형 압력 70Mpa, 최종압분 압력 210MPa, 235MPa, 260MPa의 3종류 압분체를 Ar-4%H_2의 환원성 분위기하 1700℃에서 4시간 소결하여 소결체를 제조하였다. Fig. 5는 제조된 소결체를 보여준 것으로 외관상 건전한 형상을 보여준다. 이때 소결밀도는 Fig. 6에서 보듯이 이론밀도의 95% 이상을 유지하며 최종압분 압력에 거의 무관한 것을 알 수 있다. 그리고 결정립 크기도 5-7 ㎛이다. 이는 중수로용 핵연료 소결체 품질사양을 만족시키는 결과이다. 이로써 DUPIC 핵연료 제조시험을 위해 조사재시험시설 M6 핫셀에 설치된 제조시험장치들의 성능을 입증할 수 있었으며, 또한 개발된 제조기술을 검증할 수 있었다.

3.3. 모의 DUPIC 소결체 제조시험

사용후 경수로 핵연료 물질 대신에 천연 UO_2 소결체를 사용해 앞서 제조시험에서 입증된 시험장치와 공정기술로 Fig. 2의 DUPIC 핵연료 제조공정흐름에 따라 모의 DUPIC

소결체 제조시험을 행하였다. 앞서 UO_2 소결체 제조시험에서 만들어진 소결체 약 500g을 산화/환원로에 2층으로 균등하게 장입한 후 산화 및 환원 3 cycle의 OREOX(Oxidation and REduction of OXide fuel) 공정처리로 재소결 가능한 원료분말을 만들었다[3,4]. 산화/환원처리된 분말의 평균입도는 14.6㎛, 비표면적 0.96㎡/g 으로 순수 UO_2 분말에 비해 조대화 된 것을 알 수 있다. 또한 겉보기 밀도 1.2g/cc, 탭 밀도 2.0g/cc으로 순수 UO_2 분말의 겉보기 밀도 2.0g/cc, 탭 밀도 2.5g/cc보다 낮은 값을 보여 주었다. 그리고 산화/환원처리 후 분말의 O/U비는 2.03으로 OREOX공정이 적절함을 알 수 있었다. 산화/환원처리된 분말을 수평식 볼밀(ball mill)로 밀링한 후 밀링에 따른 분말의 산화 정도를 알아보기 위해 밀링처리한 분말의 O/U비를 측정한 결과 2.06으로 밀링에 따른 산화는 그다지 문제가 되지 않았다. 밀링처리된 분말의 평균입도는 1.8㎛, 비표면적 2.1㎡/g으로 분말이 잘 미립화된 것을 알 수 있었으며, 분말의 밀도는 겉보기 밀도 2.5g/cc, 탭 밀도 4.5g/cc로 밀링전 분말보다 약 2배정도 높게 나타났다. 이는 밀링공정이 아주 효율적인 것을 알 수 있으며 소결가능한 분말 제조를 위해서는 필요한 공정기술임을 암시한다. Fig. 2의 제조흐름에 따라 완성된 소결체는 Fig. 7과 같이 외관상 건전한 형상을 보여준다. 이때 소결밀도는 Fig. 8과 같이 공정별 제조조건에 따라 차이가 있어 밀링공정이 포함된 제조조건이 이론밀도의 95%로 가장 높은 값을 보여주었다. Fig. 9는 소결체의 미세조직을 보여준 것으로 직선교차법으로 구한 결정립 크기는 5.4㎛이었다. 이들 결과는 중수로용 핵연료 소결체 사양을 만족하는 값이다. 이로써 DUPIC 핵연료 제조시험을 위해 조사재시험시설 M6 핫셀에 설치된 제조시험장치들과 개발된 제조공정기술들은 DUPIC 핵연료 소결체의 성공적 제조 가능성을 확인시켜 주었다.

4. 결 론

본 실험의 목적은 DUPIC 핵연료 제조를 위한 시험장치들의 성능 입증과 개발된 제조공정기술의 검증을 위한 것이다. 천연 UO_2 분말을 사용한 소결체 제조시험과 DUPIC 핵연료 제조공정흐름에 따른 소결체 제조시험을 통해 각 공정기술의 타당성을 확인하였으며, 각 처리공정에 따른 분말 및 소결체의 물성을 분석하여 최적의 제조조건을 확립하기 위한 기초자료를 얻을 수 있었다. 본 실험에서 얻은 주요 결과는 다음과 같다.

1. DUPIC 핵연료 제조시험을 위해 조사재시험시설 M6 핫셀에 설치된 제조시험장치의 성능이 입증되었다.
2. 원격 핵연료 제조작업을 고려할 경우 roll-compacting 기술보다는 압분프레스를 이용한 예비성형기술이 적절하였다.
3. DUPIC 핵연료 제조를 위한 분말처리 및 소결체제조 공정기술이 검증되었다.
4. 개발된 핵연료 시험장치와 제조공정기술로 핫셀에서 원격조작으로 DUPIC 핵연료 소결체 제조 가능성이 입증되었다.

감사의 글

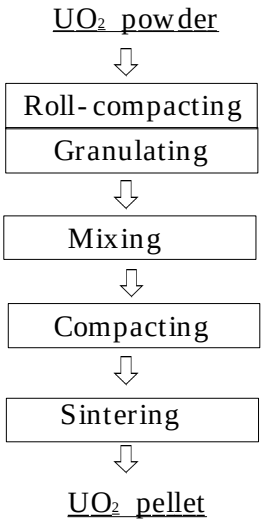
본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

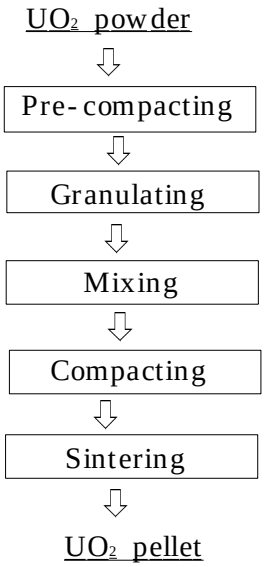
1. H. Keil, P. Boczar, H. S. Park, "Options for the Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU(DUPIC)," Proceedings of the Third International Conference on CANDU Fuel, 1992 October 4-8, Chalk River, Canada
2. **양명승 외**, "**경·중수로 연계 핵연료 기술개발**" KAERI/RR-1744/96 (1997)
3. K. K. Bae, B. G. Kim, Y. W. Lee, M. S. Yang and H. S. Park, *J. Nucl. Mater.,* 209 (1994) p274
4. B. G. Kim, K. W. Song, J. W. Lee, K. K. Bae, M. S. Yang and H. S. Park, *J. Kor. Cera. Soc.,* 32 (1995) p471

Table 1 Experimental apparatus and process parameters

실 험 장 치	**제 원**	**실 험 조 건** (500g **기준**)
OREOX Furnace	1. Type : Box furnace 2. Temp. range : Room temp. to 1200℃ 3. Environment : Air, Ar-4%H_2, Ar Gas	**산화**: 500℃, Air **환원**: 700℃, Ar-4%H_2 3 cycle**처리**
Mill	1. Type : Horizontal ball mill 2. Chamber capacity : 2 L 3. Rotational speed : 1200 rpm Max.	450rpm, 10min 600rpm, 10min
Roll Compactor	1. Type : 3**상 유도전동기** 2. **용량** : 200W 3. **전원** : 220V/60Hz 4. **감속비** : 1/30	30rpm **초경** roll
Mixer	1. Type : 3**상 유도전동기** 2. **용량** : 400W 3. **전원** : 220V/60Hz 4. **감속비** : 1/25	30rpm, 20min
Compaction Press	1. Type : Double acting hydraulic press 2. Capacity : 10 Tons	3500 - 5500 psig
Sintering Furnace	1. Type : Pot-type furnace 2. Temp. range : Room to 2000℃ 3. Environment : Ar-4%H_2 Gas	1700℃, 4hr Ar-4%H_2 atmosphere

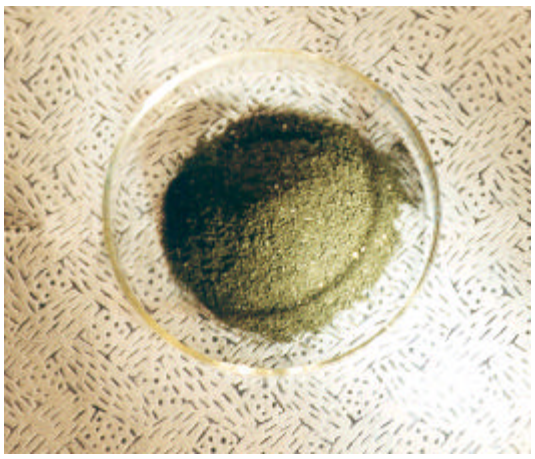


(a) Roll-compacting route

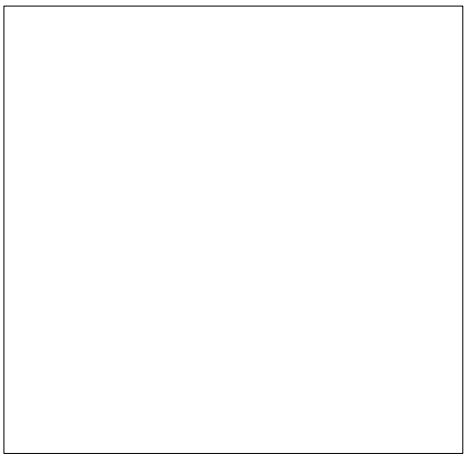


(b) Pre-compacting route

Fig. 1 The fabrication route of UO_2 pellet.



(a) Granulated powder



(b) Sintered pellet

Fig. 3 Granulated powder and sintered pellet prepared by roll-compacting route.

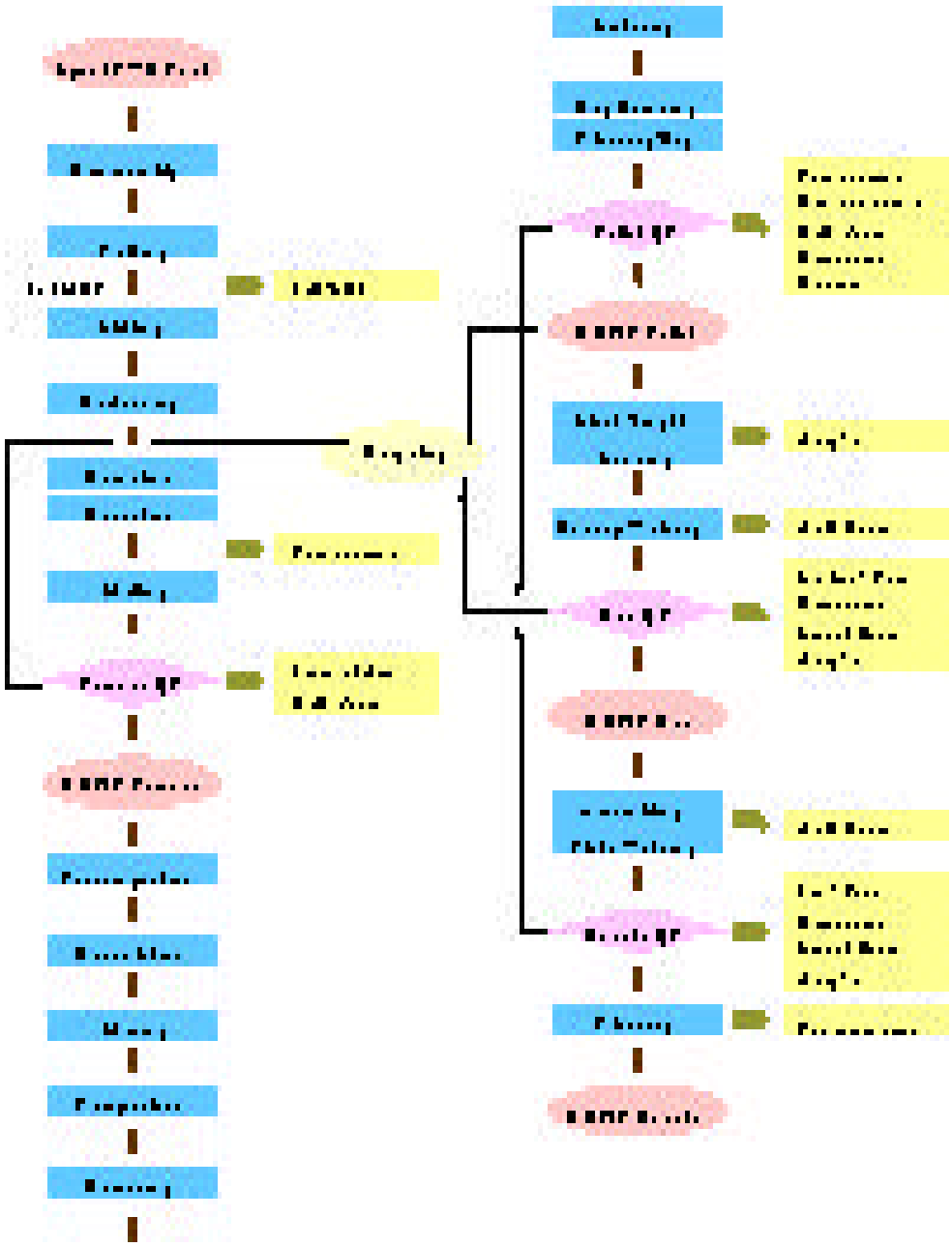


Fig. 2 Detailed flow chart of the DUPIC process.

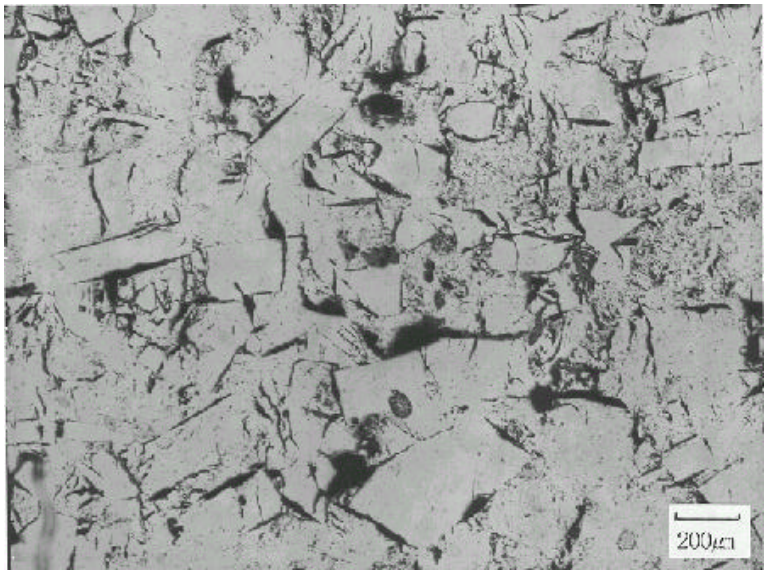


Fig. 4 Polished surface of the sintered pellet prepared by roll-compacting route.

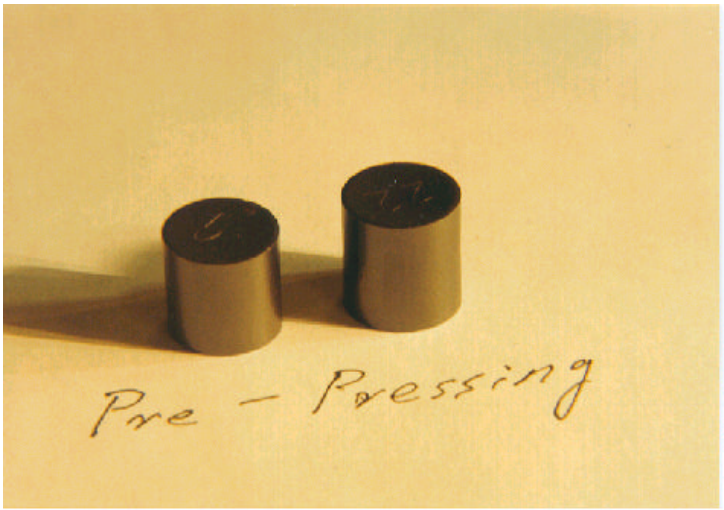


Fig. 5 The sintered UO_2 pellets made by pre-compacting route.

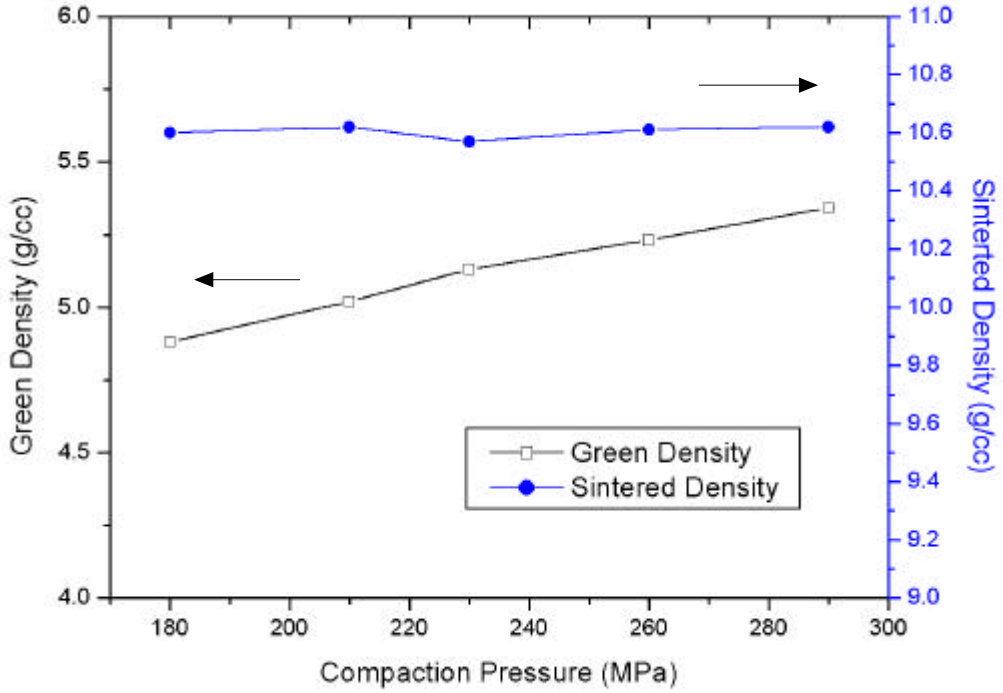


Fig. 6 The density variations with the compaction pressure.

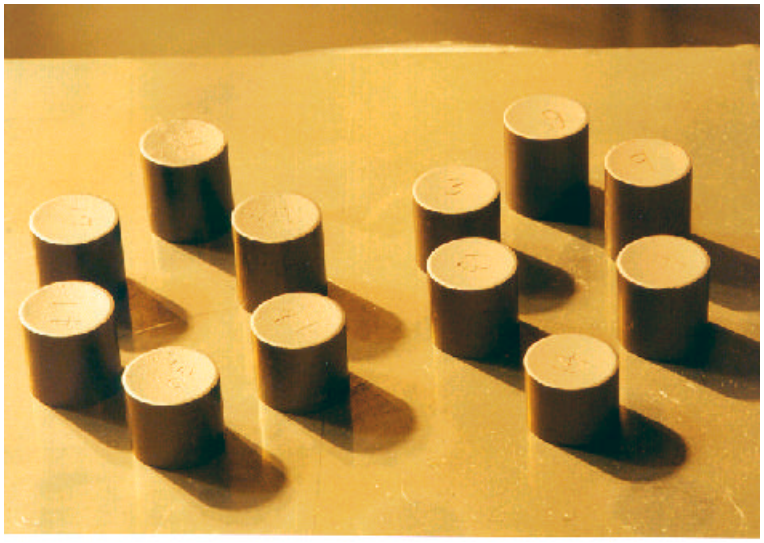


Fig. 7 UO-based DUPIC pellets fabricated by DUPIC process flow.

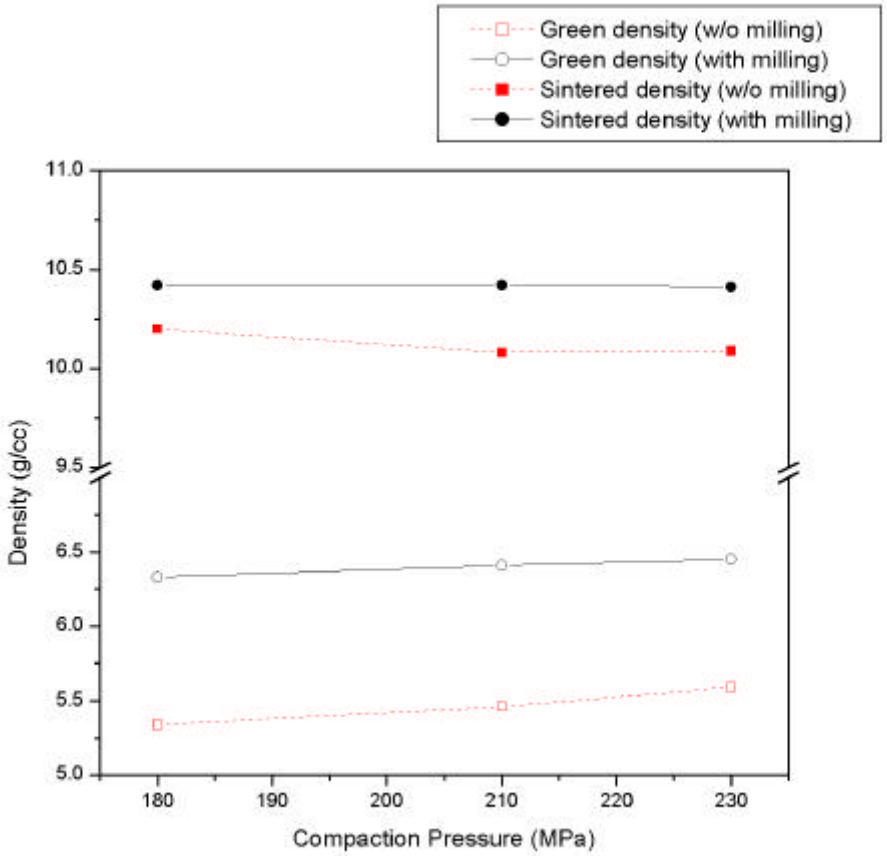


Fig. 8 The density variations with the compaction pressure and powder treatment.

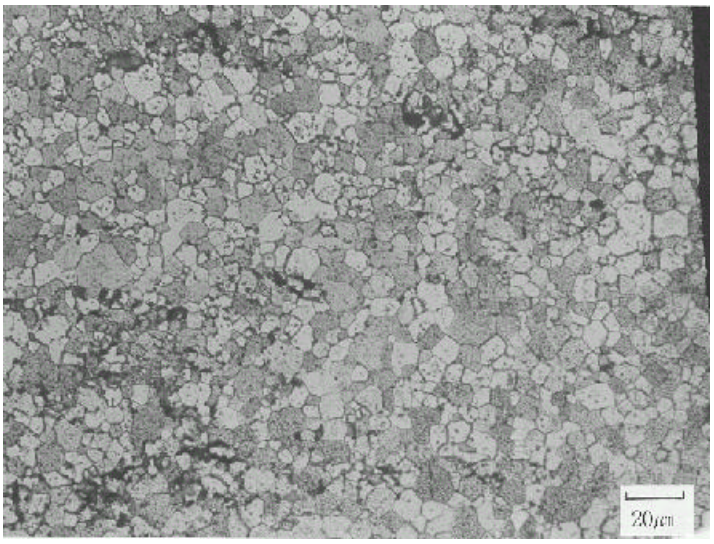


Fig. 9 Grain structures of the UO_2-based DUPIC pellet.