

'99 추계학술발표회 논문집

한국원자력학회

순환(Recovered) 이산화우라늄(UO_2)의 분말특성 연구

A Study on the Powder Characteristics of Recovered Uranium Dioxide

권혁일, 윤정현, 지철구, 조문성, 심기섭, 석호천

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

중수로용 고연소도 개량핵연료 개발을 위한 핵연료물질로 일차적으로 사용이 고려되고 있는 순환우라늄(RU)의 분말특성을 실험을 통하여 분석하였다. 본 연구 결과, 순환우라늄(RU) 분말의 특성치는 기존 CANDU 핵연료 제조용 ADU-NU 분말의 특성치와 아주 잘 일치하고 있어 CANDU 핵연료 가공기술이 그대로 활용될 수 있을 것으로 기대된다. 이들 특성 Data는 향후 CANFLEX-RU의 가공성 관련 연구에 기초자료로 활용될 것이다.

Abstract

The physical and chemical characteristics of recovered uranium(RU) from a LWR spent fuel have been experimentally analyzed, which is considered as the first candidate for the development of CANDU high burnup fuel. The experiment results showed that the RU characteristics meet well with the CANDU fuel specifications, and it is expected that the existing CANDU fuel fabricating technology could be directly used in the RU fuel production.

1. 서론

국내 최초의 중수로형 원자력발전소인 월성 1호기는 1983년 준공 이래 16년동안 성공적으로 운전이 되어 왔으며, 금년 9월에는 월성 4 호기 상업운전이 시작되어 국내 중수로의 발전설비 용량은 2,779 MWe 으로서 국내 원자력발전 설비 용량의 20 %를 차지하고 있다. 이러한 국내 중수로 원전 운전현황에서 한국원자력연구소(KAERI)는 1991년부터 캐나다원자력공사(AECL)와 함께 향후 노후 원자로에서 발생할 문제에 대비하고 사용

후 핵연료발생량 감축 등을 통한 안전성과 경제성을 향상 할 수 있도록 하기 위하여 저농축우라늄(LEU), 순환우라늄(CU) 등의 개량핵연료주기를 사용한 중수로용 개량핵연료(CANFLEX: CANDU Flexible Fuelling)를 개발하여 왔다.[1]

중수로용 개량 핵연료다발인 CANFLEX 는 기존 37개 핵연료봉 다발에 비해 두 가지 특성을 갖도록 설계되어 있다. 첫째 특징으로, CANFLEX 핵연료봉에는 1개 이상의 버튼이 부착되어 있다. 이 버튼 부착을 통해, 냉각수의 난류를 유발시켜 핵연료다발의 임계열유속(CHF)을 대폭 향상시킬 수 있으며, 궁극적으로 원자로의 운전 여유도를 6% 이상 증가시킬 수 있다. 두 번째 특징으로, CANFLEX 다발은 43개 핵연료봉으로 구성되어 있으며, 또한 외부 2개 환에는 기존 핵연료봉보다 직경이 약간 작은 핵연료봉들이 위치되고 내부 2개 환에는 직경이 약간 큰 핵연료봉들이 위치된다. 이상과 같이 외부에 가는 연료봉을 사용하고 연료봉 수를 증가시켜 줌으로써 핵연료봉의 최고 선출력을 기존 핵연료봉에서와 비교하여 20% 정도 낮출 수 있다. 이러한 선출력 감소는 그 자체로 핵연료의 안전 운전을 보장하지만, 핵분열 기체 방출 량 또한 대폭 감소되므로 핵연료의 고연소도 운전을 가능하게 한다. 즉, CANFLEX 핵연료다발을 사용하면, 다발 그 자체의 구조적 설계 특징으로부터 원자로의 운전여유도를 6% 이상 증가시킬 수 있을 뿐만 아니라, 적절한 개량 핵연료주기를 또한 도입함으로써 고연소도 운전을 통해 핵연료 경제성을 대폭 증대시킬 수 있다. 중수로용 핵연료로 도입될 수 있는 개량 핵연료주기로서, 순환우라늄 핵연료를 첫 번째 후보로 고려하고 있고, 두 번째 후보로는 저농축우라늄 핵연료를 고려하고 있다.[2]

본 논문에서는 순환우라늄분말 변환공정 검토, 미산화 순환우라늄분말의 물리 및 화학적 특성과 소결성에 대한 실험적 결과를 논의 기술하고자 한다.

2. 미산화 순환우라늄 분말 변환공정

순환우라늄 생산 및 순환우라늄 핵연료 기술은 재처리공장을 가동하고 있는 영국과 프랑스를 중심으로 개발 확보하고 있다.[3~6] 현재 영국 프랑스 등 서방세계에는 약 25,000 톤 (CANDU-6 원전 1기에 500 년 사용할 수 있는 양에 상당) 이상의 순환우라늄이 누적되어 있으며 경수로에서의 혼합핵연료 사용이 더욱 활성화되어짐에 따라 그 누적량이 더욱 늘어날 것으로 전망된다. 따라서, 순환우라늄의 원가는 천연우라늄보다 많이 저렴할 것이며, 또한 농축도가 0.9%이므로 핵연료 방출연소도가 천연우라늄 핵연료보다 2배 증대되어 사용후핵연료 발생량이 1/2 만큼 감소하게 된다. 순환우라늄에는 강력한 중성자 흡수 동위원소인 ^{238}U 가 포함되어 있다. 경수로에 순환핵연료를 사용하고 자하는 경우 순환우라늄을 재농축 하여야 하며 이때 ^{238}U 도 같이 농축된다. 증가된 ^{238}U 의 양에 따라 중성자 흡수율이 더 커지므로, 경수로에 순환핵연료를 사용하기 위해서는 추가 농축을 통해 이 흡수량 만큼을 보상하여 주어야 한다. 한편, 중수로에서는 재농축

을 수행할 필요 없이 잔존 농축도(tailed enrichment)를 갖는 순환핵연료를 그대로 사용할 수 있을 뿐만 아니라, 중수로내 중성자 스펙트럼이 충분히 열중성자화(thermalized)되어 있어 열외중성자(epi-thermal) 영역에서 중성자 흡수가 강한 ^{238}U 의 영향이 또한 상대적으로 작다. 이러한 중수로에서의 특징을 고려할 때 향후 기존의 농축 방법이 더욱 개선되어 농축비용을 극소화하지 않는 한 순환핵연료가 경수로보다 중수로에 더욱 적합함을 알 수 있다.

재처리과정에서 생성되는 순환우라늄에 대한 변환공정은 공히 질산우라늄 용액(UNL : Uranyl Nitrate Liquid) 상태에서부터 출발하게 되며, 어떠한 변환공정을 거치느냐에 따라 순환핵연료의 방사능 특성, 경제성 및 노내 성능이 달라지게 된다. 국제적으로 순환우라늄 분말 변환공정으로 주로 사용되고 있는 공정은 아래의 3가지로 알려져 있다(표 1 참조).

- 1) IDR(Integrated Dry Route) 변환공정
- 2) ADU(Ammonium Di-uranate) 변환공정.
- 3) MDR(Modified Dry Route) 변환공정

상기 3가지 변환공정중 현재 가장 유력한 중수로용 핵연료 분말 변환 공정은 ADU 혹은 MDR 변환공정이 고려될 수 있다. ADU 공정은 프랑스 COGEMA 사가 소유하고 있는 기술로서 $\text{UNL} \rightarrow \text{U}_3\text{O}_8 \rightarrow \text{UO}_2$ 의 변환 공정이다. 한편, MDR 변환공정은 IDR 변환공정의 단점인, 미원화된 공정 및 변환과정에서 kiln에 누적되는 감마선 방출 원소들의 방사선 장애를 방지하기 위해 부가적으로 설치되어야 하는 차폐시설 등의 원가상승 요인을 제거하고, 중수로용 핵연료용 우라늄 분말 생산에 적합하도록 고안된 일원화된 변환 공정이다. 이 공정은 미국의 재처리 공정에서 사용하고 있던 MDD (Modified Direct Denitration) 공정 원리를 기초로 BNFL에서 개발하였으며, $\text{UNL} \rightarrow \text{UO}_3 \rightarrow \text{UO}_2$ 의 방식으로 이산화우라늄 분말을 생산한다.

중수로용 핵연료는 역사적으로 ADU 변환공정으로 만들어진 이산화우라늄을 사용하며 왔으므로, 핵연료 시방 및 해석모델 등도 ADU 핵연료를 기준으로 작성되어 있다. 따라서, MDR 핵연료가 ADU 핵연료와 노내에서 동일한 거동 특성을 나타낸다는 것을 입증하여야 하는데, 이를 위해 KAERI와 AECL은 현재 노내외 실험을 수행하고 있다. 다음 3절에서는 본 MDR 핵연료 양립성 평가 시험의 일환으로 수행한 MDR 핵연료의 성형성 및 소결성 시험 결과를 ADU 핵연료의 특성과 비교 평가하였다.

3. 이산화 순환우라늄 분말 특성 및 가공성 실험, 결과 및 토의

본 실험에는 BNFL로부터 제공받은 MDR-RU UO_2 분말을 사용하였다. 순환우라늄(RU) 분말 특성시험·분석에 있어 화학적 특성 분석으로는 U-동위원소 함량, U-factor, 불순물 함량 등이 포함되었고 물리적 특성 시험에는 O/U비, 입자크기, 비표면적 등이 포

함되었다. 이와 함께 시간에 따른 순환우라늄(RU) 분말의 잔류방사능 특성변화를 지속적으로 측정하였다. 또한, 순환우라늄(RU) 분말의 소결성 실험을 통하여 압분체의 압분밀도, 소결체의 소결밀도, 평균결정립크기, 미세조직등을 측정하였다.

본 실험에 사용한 실험 및 측정방법은 우리 연구소에서 CANDU 핵연료 제조 및 CANFLEX 개발을 위하여 확립한 표준 절차 및 지침에 따랐다.

순환우라늄(RU) 분말의 물리,화학적 특성 및 방사능특성 시험결과는 아래와 같이 요약된다. 특성시험 결과의 Reference Data와의 비교는 천연우라늄 특성치 Data (캐나다 Cameco, ADU)에 대해 이루어졌다.

1) 순환우라늄(RU) 분말의 물리적특성 시험 결과

순환우라늄(RU) 분말의 물리적 특성시험 결과 Data(표 2 참조)는 ADU-NU 분말의 특성치 Data와 거의 유사하게 나타나고 있다.

2) 순환우라늄(RU) 분말의 화학적특성 시험 결과

순환우라늄(RU) 분말의 화학적 특성 시험결과 Data(표 3 참조)는 U 동위원소 함량을 제외하고는 ADU-NU 분말의 특성치 Data와 유사한 결과를 보여주고 있다. 순환우라늄(RU)에는 잔류 핵분열생성 원소 및 악티나이드계열(Actinides) 농도가 무시할 정도로 작았으며, 특히 휘발성으로 인하여 소결과정중 소결로내 방사능 오염이 우려되는 Cs-137의 함량은 측정범위 이하로 검출되지 않았다. 또한, Ni, Fe, Cr등 일부 원소의 불순물함량이 천연우라늄(NU) 분말보다 높게 나타났으나 전체적으로 허용등가보론농도(EBC)는 천연우라늄(NU)과 동일한 최대 1.29이하인 것으로 분석되었다.

3) 순환우라늄(RU) 분말의 소결특성 시험 결과

순환우라늄(RU) 분말의 소결성 시험결과 Data(표 4 참조)는 ADU-NU 분말의 특성치 Data와 잘 일치하고 있다. 순환우라늄(RU) 소결체의 미세조직은 그림 1과 같으며 천연우라늄(NU)의 그것과 유사한 결과를 보여주고 있다.

4) 순환우라늄(RU) 분말의 방사능특성 측정 결과

순환우라늄(RU) 분말의 방사선량률($\mu\text{Sv/hr}$)을 수입후 일정간격으로 지속적으로 측정하였다. 측정은 용기 표면, 표면으로부터 30cm, 그리고 표면으로부터 1m 거리등 3 지점에서 수행되었다. 측정결과, 순환우라늄(RU)의 방사선량률은 천연우라늄(NU)의 약 1.2~2.3배인 것으로 나타났으며(표 5 참조), 시간에 따른 표면에서의 방사선량률 변동 추이는 그림 2와 같이 완만한 상승세를 보여주고 있다.

5) 순환우라늄(RU) 분말의 취급 안전성 검토

보유중인 약 50Kg의 순환우라늄(RU) 분말은 영국 BNFL로부터의 수송, 소내 반입 및 취급, IAEA의 핵사찰 수검등의 사용 경험을 통하여 볼 때 천연우라늄(NU) 취급 절차 이상의 특별한 안전조치는 요하지 않는 것으로 판단된다. 다만, 향후 대규모의 양산 가공시 어떠한 추가적인 안전관리 요건을 필요로 하는지에 대해서는 신중히 고려해야 할 것이다.

4. 결론

CANFLEX-RU 가공기술개발 타당성 검토를 위해 순환우라늄(RU) 분말 변환공정 검토 및 분말특성 시험을 수행하였으며 그 결과 Data는 기존 CANDU 핵연료 제조용 ADU-NU Data와 잘 일치하고 있어 CANDU 제조기술을 그대로 활용할 수 있을 것으로 기대된다. 다만, 앞으로 세부적인 순환우라늄(RU) 분말/소결체의 잔류 방사성 특성 검토, 순환우라늄(RU) 분말의 성형성 및 소결성 검토, 순환우라늄(RU) 핵연료 제조에 필요한 특수공정 파악, 순환우라늄(RU) 특성 분석/검토, 순환우라늄(RU) 소결체 제조공정 검토, 품질관리 요건 분석/검토등을 통하여 CANDU 핵연료 가공기술을 활용한 순환핵연료 특성 및 제조기술 개발 타당성을 종합적으로 검토, 분석해야 할 것이다.

본 연구 결과는 차후 관련 연구를 위한 참고 자료로 활용될 수 있으며, 나아가서 중수로용 원자로의 효율 향상을 도모하고 매년 대량으로 방출되는 사용후핵연료를 대폭 감축시킬 수 있는 고연소도 개량핵연료(CANFLEX-SEU) 개발의 기초 자료로서 활용될 수 있을 것으로 사료된다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었다.

5. 참고문헌

- [1] H. C. Suk et al., "Technical and Economic Evaluations of CANDU Advanced Fuel Bundle Designs", Journal of the Korean Nuclear Society, Volume 22, Number 4, December 1990, pp 389-409.
- [2] H. C. Suk, "PHWR Advanced Fuel R & D for the 21st Century in Korea", Presented at 6th International Conference on CANDU Fuel, 1999 September 26-30, Niagra Falls, Ontario, Canada.
- [3] J-P, Lannegrace, "The Recycling of Reprocessed Uranium", Uranium Nuclear Energy, 1991, pp83-88.
- [4] J. Pellissier-Tanon et al., "Uranium Recycling in France", Nuclear Europe Worldscan, 12 (3-4), 1992, pp47-48.
- [5] P. Durante, "Processing of Recycled Uranium: Experience in the Cogema Group", TopFuel '97, BNES, 1997, pp3.13-3.24.
- [6] C. Robbins et al., "Technical and Commercial Aspects of the Use of Reprocessed Uranium", TopFuel '97, BNES, 1997, pp3.25-3.34.

표 1. 순환우라늄(RU) 분말의 변환공정 장단점 비교,

후보 공정	장단점 비교
IDR	○ 일원화된 공정 ($UNL \rightarrow UF_6 \rightarrow UO_2$) - CANDU 에는 농축을 위한 변환단계 불필요 - 변환시설에 대한 차폐장치 필요 ○ 기존 변환시설 활용 가능 (BNFL) ○ 다년간 사용 경험에 따라 취급안전성 확보 ○ ADU-NU 핵연료와의 양립성 규명을 위한 성형성/소결성 특성시험과 조사시험 필요
ADU	○ 일원화된 공정 ($UNL \rightarrow UO_2$) ○ 기존 변환시설 활용 가능 (COGEMA) ○ 취급 안전성에 대한 연구 필요: 사용경험 없음 ○ ADU-NU 핵연료와의 양립성 규명을 위한 성형성/소결성 특성시험과 조사시험 불필요
MDR	○ 일원화된 공정 ($UNL \rightarrow UO_3 \rightarrow UO_2$) ○ 신규 변환시설 투자 필요 (BNFL/AECL/KAERI) ○ 취급 안전성에 대한 연구 필요: 사용경험 없음 ○ ADU-NU 핵연료와의 양립성 규명을 위한 성형성/소결성 특성시험과 조사시험 필요

표 2. 순환우라늄(RU) 분말의 물리적 특성시험결과

Characteristics	Units	Results*	Reference** Data(NU)	CANDU Spec. for NU
Pour density	g/cm^3	1.18	1.14	0.75 ~ 1.25
Specific Surface area	m^2/g	3,535	5.7	4.7 ~ 6.3
Particle size	μm	2.91	2.2	99.5% < 100 μm
O/U ratio	-	2.07	2.09	2.05 ~ 2.18

* : MDR-RU powder produced by BNFL, UK.

** : ADU-NU powder produced by CANECOM, Canada (Powder for CANDU Fuel)

표 3. 순환우라늄(RU) 분말의 화학적특성 시험 결과

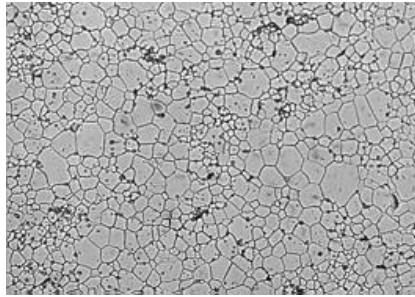
Characteristics	Units	Results	Reference Data(NU)	Remarks
U-232	ng/gU	-	-	
U-234	g/100gU	0.0132	-	
U-235	g/100gU	0.9667	0.7255	
U-236	g/100gU	0.3313	-	
U-238	g/100gU	98.6889	99.2745	
U-factor	g/100gU	87.23	87.33	

표 4. 순환우라늄(RU) 분말의 소결특성 시험결과

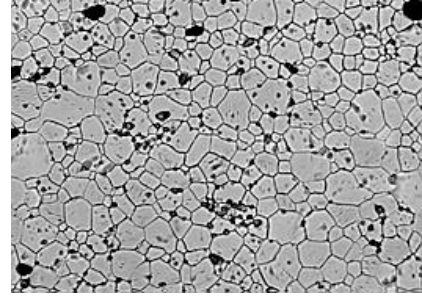
Characteristics	Units	Results (RU)	Reference Data(NU)	CANDU Spec. for NU
Green density	g/cm ³	5.73	5.4	4.7 ~5.5
Sintered density	g/cm ³	10.60	10.62	>10.57
Grain size	μm	7.87	9.1	6 ~28

표 5. 순환우라늄(RU) 분말의 방사성특성 측정결과

Distance	Units	Results (RU)	Reference Data(NU)	Remarks (RU/NU)
Surface	μSv/hr	36.6	16.2	2.26
30 cm	μSv/hr	1.55	0.78	1.99
1 m	μSv/hr	0.34	0.28	1.21



RU (200배)



NU (200배)

그림 1. 순환우라늄(RU) 및 천연우라늄(NU) 소결체의 미세조직 비교

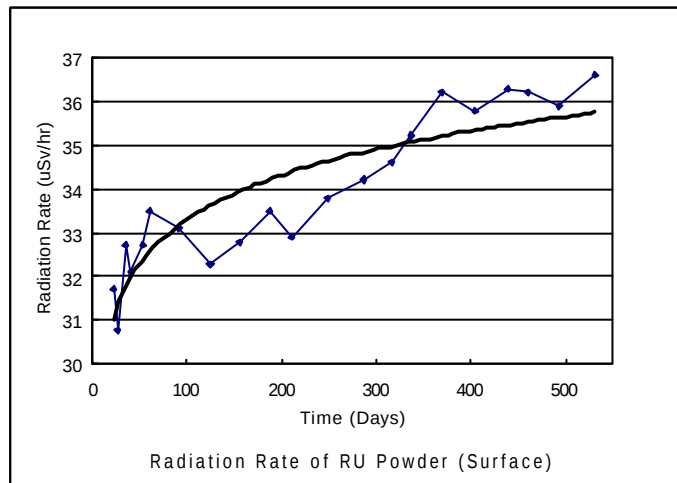


그림 2. 순환우라늄(RU) 표면 방사선량의 시간에 따른 증배 곡선