

모의 DUPIC 핵연료 특성연구

Characteristics Study of Simulated DUPIC Fuel

강권호, 배기광, 문제선, 송기찬, 박희성, 김영순, 양명승

한국원자력 연구소

요 약

DUPIC 핵연료의 물성, 핵분열기체 방출 및 입자성장 등이 일반 핵연료와 다르기 때문에 DUPIC 핵연료의 물성, 노내 거동 및 핵연료로서의 성능을 분석하기 위한 기초자료를 확보하는 것이 중요하다. 그러나 사용후 핵연료를 OREOX 공정을 거쳐 재 소결한 DUPIC 핵연료를 이용하여 열물성등을 직접 측정하는 것은 사용후 핵연료로부터 발생하는 높은 방사선량 때문에 실험실 규모의 연구에는 방사선 차폐등 많은 어려움이 따른다. 따라서 DUPIC 핵연료의 물성을 측정하기 위하여 DUPIC 핵연료를 모사한 모의 DUPIC 핵연료를 제조하여야 한다. 본 보고서에서는 모의 경수로 사용후 핵연료를 이용하여 모의 DUPIC 핵연료를 제조하기 위한 분말처리, OREOX, 성형 및 소결공정에 관하여 기술하였다. 모의 DUPIC 핵연료를 제조하기 위하여 모의 경수로 사용후 핵연료를 3회 OREOX 후 5회의 attrition milling을 거친 분말을 1.3~1.65 ton/cm²의 압력으로 성형한다. 약 1800°C에서 10시간 소결하여 소결밀도 10.37~10.40 g/cm³의 소결체를 만들었다.

Abstract

It is important to get basic data to analysis physical properties, behavior in reactor and performance of the DUPIC fuel because physical properties, fission gas release, grain growth and et al. of the DUPIC fuel is different from the commercial UO₂ fuel. But what directly measures physical properties et al. of DUPIC fuel being resinterred simulated spent fuel through OREOX process is very difficult in laboratory owing to its high level radiation. Then fabrication of simulated DUPIC fuel is needed to measure its properties. In this study, processes on powder treatment, OREOX, compaction and sintering to fabricate simulated DUPIC fuel using simulated spent fuel are described. To fabricate simulated DUPIC fuel, the powder from 3 times OREOX and 5 times attrition milling simulated spent fuel is compacted with 1.3 ton/cm². Pellets are sintered in 100% H₂ atmosphere over 10 h at 1800°C. Sintered densities of pellets are 10.2~10.4 g/cm³.

1. 서론

DUPIC(Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors) 핵연료는 사용후 경수로 핵연료를 직접 재 가공하여 증수로에 다시 사용하고자 하는 자원 재활용 개념의 핵연료이다. 1993년도까지 수행한 타당성 연구의 결과로서 OREOX(Oxidation and Reduction of Oxide fuel)가 가장 바람직한 제조공정이라는 결론[1]을 바탕으로 OREOX 공정을 이용한 핵연료 제조 및 이의 성능검증 연구를 수행 중에 있다. DUPIC 핵연료의 특징은 약 0.6%의 Pu를 비롯하여 다량의 핵분열 생성물을 포함하고 있으므로 물리적인 성질이 일반 핵연료와는 다르다는 것이다. 즉, 핵연료의 물성, 핵분열기체 방출 및 입자성장 등이 일반 핵연료와 다를 것으로 예상되므로 이러한 물성의 확보와 노내 거동 및 핵연료로서의 성능을 분석하기 위한 기초자료를 확보하는 것이 중요하다. 그러나 사용후 핵연료를 OREOX 공정을 거쳐 재 소결한 DUPIC 핵연료를 이용하여 열물성등을 직접 측정하는 것은 사용후 핵연료로부터 발생하는 높은 방사선량 때문에 실험실 규모의 연구에는 방사선 차폐등 많은 어려움이 따른다. 따라서 물성등에 관한 연구를 위하여 모의 DUPIC 핵연료의 제조가 필요하다. 모의 DUPIC 핵연료는 모의 사용후 핵연료를 OREOX 공정을 거쳐 재소결하여 제조하며, 모의 사용후 핵연료는 천연우라늄에 핵분열 생성물을 첨가하여 제조할 수 있다. 사용후 핵연료에 분포되어 있는 핵분열생성물은 다음과 같다.

- matrix 내에 용해된 원소 : Sr, Zr, Nb, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm;
- 금속 석출물 : Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sb, Te;
- 산화물 석출물 : Ba, Zr, Nb, Mo, (Rb, Cs, Te);
- 기화성 물질 : Kr, Xe, Br, I, (Rb, Cs, Te).

본 논문에서는 모의 경수로 사용후 핵연료를 이용하여 모의 DUPIC 핵연료를 제조하기 위한 분말처리, OREOX, 성형 및 소결공정에 관하여 기술하였다.

2 실험

2.1 재료

모의 사용후 핵연료 제조를 위하여 천연 이산화우라늄(UO₂)은 ADU (Ammonium diuranate)공정으로 제조된 분말을 이용하였다. 가압경수로에서 33 MWd/kgU 까지 연소된 사용후 핵연료를 모사하기 위하여 ORIGEN-2 코드를 이용하여 핵분열 생성물을 계산하였으며, 휘발성 물질은 배제하고 함량이 높은 15개 원소를 선정하여 UO₂ 분말에 첨가하였다. 이중에서 시중에서 구하기 어려운 성분은 특성이 비슷한 원소로 대체하여 첨가하였

으며, 첨가된 핵분열 생성물의 양은 table 1에 나타내었다. 핵분열 생성물이 첨가된 UO_2 분말을 1.2 ton/cm^2 의 압력으로 성형하여 1800°C 수소분위기에서 12시간 소결하여 모의 사용후 핵연료를 제조하였다.

Table 1. Contents of fission products added in UO_2

Elements	원자량	Oxides	분자량	Oxides 량 g/1000g U	Oxides 량 g/200g U
Zr	91.22	ZrO_2	127.22	0.606	1.21
Mo	96	MoO_3	144	0.606	1.21
Ru	101.07	RuO_2	137.07	0.375	0.75
Pd	106.4	PdO	122.4	0.221	0.44
Ba	137.33	$BaCO_3$	197.33	0.323	0.65
La	138.9	La_2O_3	162.9	0.173	0.35
Ce	140.12	CeO_2	176.12	0.360	0.72
Pr	140.91	Pr_2O_3	164.91	0.158	(0.32)
Nd	144.24	Nd_2O_3	168.24	0.571	1.7
					$[1.14+0.32(Pr_2O_3)+$ $0.24(Sm_2O_3)]$
Sm	150.36	Sm_2O_3	174.36	0.120	(0.24)
Rb	85.47	Rb_2O_3	109.47	0.533	0.11
Sr	87.62	SrO	103.62	0.103	0.21
Y	88.9	Y_2O_3	112.9	0.068	0.14
Rh	102.9	Rh_2O_3	126.9	0.062	0.12
Te	127.6	TeO_2	163.6	0.077	0.15

괄호안의 oxide 양은 Nd로 대치한 양임

2.2 분말처리

모의 DUPIC 핵연료를 제조하기 위하여 모의 사용후 핵연료를 3회의 OREOX공정을 거친 분말(DUPIC 분말)을 이용하였다. DUPIC 분말 약 400g을 attrition miller에 장입하여 150 rpm의 arm 회전속도로 약 15분간 분쇄하였으며, 5회 반복하였다. 초기에 분쇄하지 않은 분말의 입도가 $3.28 \mu\text{m}$ 에서 1회분쇄후 입도 $1.68 \mu\text{m}$, 5회분쇄후 입도 $0.5 \mu\text{m}$ 까지 분쇄횟수가 증가할수록 입도는 작아지는 것으로 나타났다. 5회 분쇄된 분말은 입자의 크기가 너무 작기 때문에 분말의 유동성 및 충전율을 높이기 위하여 조립화를 시켰다. 즉, 약 1 ton/cm^2 의 압력으로 예비 성형한 성형체를 mortar에서 약하게 갈은 후 35번 채를 이용하여 조립화(granulation)를 실시하였다.

2.3 성형 및 소결

다이벽면과 성형체간의 마찰을 막기위해 Zn stearate를 벤젠에 녹여 벽면에 도포한 상태로 성형하였다. 1.3~1.65 ton/cm²의 압력으로 성형하였으며, 1800°C, H₂(100%) 분위기에서 약 10시간 소결하였다. OREOX 공정을 거친 DUPIC분말과 원료분말과의 차이를 확인하기 위하여 같은 조건으로 성형 소결하였다.

3. 결과 및 고찰

표 2는 성형압에 따른 성형밀도, 소결밀도와 소결전 후 펠렛의 수축율을 나타낸 것이다. 1.3~1.65 ton/cm²의 범위에서는 성형밀도 및 소결밀도 모두 성형압에 비례하여 증가하는 것으로 나타났다. 소결밀도는 10.37~10.40 g/cm³으로 이론밀도의 약 96.6~96.9%으로

Table 2 Green density and sintered density of simulated DUPIC fuel due to compaction pressure

Compaction Pressure (ton/cm ²)	Green Pellet				Sintered Pellet			Shrinkage
	Dia. (mm)	Length (mm)	Mass(g)	Green Density (g/cm ³)	Dia. (mm)	Length (mm)	Sintered Density (g/cm ³)	
1.30	15.437	11.376	13.005	6.108	12.775	9.560	10.365	42.45
1.42	15.466	11.307	12.995	6.118	12.808	9.454	10.370	42.66
1.54	15.470	11.273	12.997	6.134	12.811	9.459	10.369	42.46
1.65	15.462	11.148	12.996	6.209	12.824	9.434	10.398	41.79

DUPIC 핵연료소결체의 기존에 만족하는 것으로 나타났다. 수축율은 길이방향으로 약 15.7%, 반경방향으로 약 17.0%였으며 부피는 42% 정도 수축하였다. 모든 시편에 미세한 외부크랙이 존재하나 깊이는 약 1mm이하이며 길이는 약 5~10mm 정도였다. 이는 표면의 연삭으로 충분히 제거될 것으로 생각된다. 그림 1은 모의 DUPIC 핵연료와 모의 사용 후 핵연료에서 발생한 크랙의 형상을 나타낸 것이다. 그림 2는 성형압이 1.3 및 1.54 ton/cm² 일 때 소결체의 미세구조를 나타낸 것이다. 성형압의 차이에 따라 미세구조의 차이는 크게 없었다.

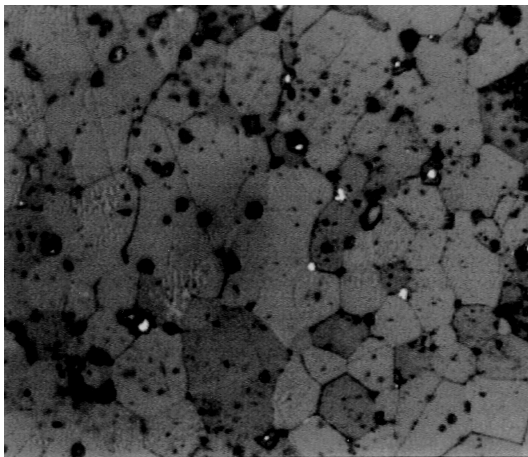


Simulated DUPIC Fuel 1.3 ton/cm²

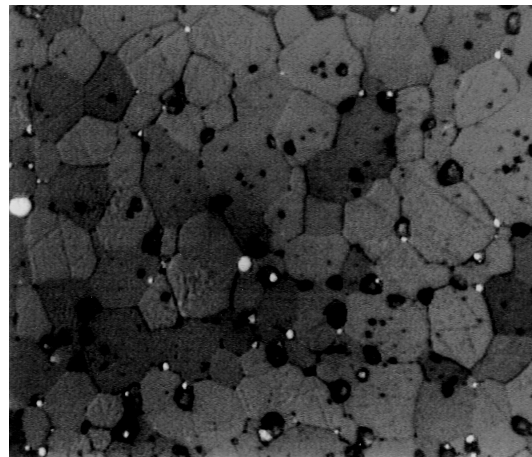


Simulated Spent Fuel 1.65 ton/cm²

Fig. 1. Crack shapes of simulated spent fuel and simulated DUPIC fuel



Compaction Pressure : 1.30 ton/cm²



Compaction Pressure : 1.54 ton/cm²

Fig. 2. Microstructure of simulated DUPIC fuel

4 결론

모의 DUPIC 핵연료 특성연구에서 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 성형압이 1.3 ton/cm²에서 1.65 ton/cm²로 증가함에 따라 소결밀도는 10.37 g/cm³에서 10.40 g/cm³로 증가한다.
2. 성형압이 1.3 ton/cm² 이상의 압력에서 길이 약 1mm이하, 깊이는 약 5~10mm의 크랙이 발생한다.
3. 적정 소결조건은 소결온도 1800°C, 시간 10시간 이다.
4. 결정립은 44 - 48 μm이다.

참고문헌

1. 양명승외, "경중수로 연계 핵연료주기 기술개발", KAERI/RR-1311/93
2. H. Kleykamp, J. Nucl. Mater. 131(1985) 221