

DUPIC 핵연료 소결체 최적 제조공정기술 개발 Development of Optimum Process for DUPIC Pellet Fabrication

김용기, 김수성, 박근일, 이재원, 김종호, 이정원

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

핫셀 시설에서 DUPIC(Direct Use of spent PWR fuel In CANDU reactor) 핵연료 제조기술과 제조공정을 개발하고 경수로 사용후핵연료를 산화/환원 공정으로 분말처리하여 DUPIC 핵연료 원료 분말을 제조하였다. 이 DUPIC 핵연료 분말을 이용하여 하나로 조사시험용 DUPIC 핵연료 소결체와 mini-element를 제조하여 조사시험 및 성능평가를 수행한 바 있다. 본 연구에서는 본격적인 DUPIC 핵연료 조사시험 및 성능 평가 뿐만 아니라 DUPIC 핵연료 제조기술성 입증을 목적으로 중수로핵연료 제조 표준 사양을 만족하는 DUPIC 핵연료 제조 공정 조건을 확립하고자 성형압 등의 제조공정 조건을 변화시키면서 DUPIC 핵연료 소결체를 제조하고 특성을 분석하였다. 실험 결과 직경 12.19 mm, 10.37~10.45 g/cm³ 의 소결밀도, Ra 0.8 μ m 이하의 표면조도를 가진 표준 사양을 만족하는 DUPIC 핵연료 소결체를 성공적으로 제조할 수 있는 최적 공정조건을 확립하였다.

Abstract

DUPIC(Direct Use of spent PWR fuel In CANDU reactor) fuel manufacturing technologies and processes have been developed at hot-cell. Using DUPIC powder prepared by the oxidation and reduction processes, the DUPIC fuel pellets and mini-elements were fabricated for the irradiation test in HANARO. An irradiation test was planned for the performance evaluation of DUPIC fuel pellets satisfying the requirements of CANDU fuel. To establish the fabrication process satisfying the CANDU specification, sintered DUPIC pellets were fabricated with a variety of process parameters. The fabricated DUPIC pellets were characterized by the inspection systems. As a result of the experiment, DUPIC pellets with 12.19 mm of diameter, 10.37~10.45 g/cm³ of sintered density, and less than Ra 0.8 μ m of surface roughness have been successfully fabricated at hot cell.

1. 서론

DUPIC(Direct Use of spent PWR fuel In CANDU reactor) 핵연료 주기기술을 개발하기 위해 2000년 4월부터 핫셀에서 DUPIC 핵연료를 제조하였으며 모의 DUPIC 핵연료 제조 실험과 PIEF(조사후시험시설)에서의 DUPIC 핵연료 특성실험을 바탕으로 DFDF(DUPIC Fuel Development Facility, IMEF M6)에서 경수로 사용후핵연료를 탈피복 공정과 산화/환원 공정을 거쳐 DUPIC 핵연료 원료 분말로 재가공할 수 있는 기술을 확립하였다[1-7].

본 연구에서는 본격적인 DUPIC 핵연료 조사시험 및 성능 평가와 DUPIC 핵연료 제조 기술성 입증 실험을 위해 2001년 5월에 약 10 kg의 경수로 사용후핵연료(G23 집합체 - A1, B5, B7, C8, D9 연료봉)를 DFDF로 운송하고 최적 공정기술 확립을 위해 성형압 등의 제조공정 조건을 변화시키면서 DUPIC 핵연료 소결체를 제조하고 특성을 분석하였다. 공정조건중 성형압은 124 ~ 310 MPa 범위가 이용되었다. 소결체의 밀도와 결정립 크기를 증가시키기 위하여 소결온도는 1800℃, 소결은 10 시간 수행되었다. 원격 조작이 가능한 검사장비를 이용하여 핫셀에서 제조된 DUPIC 소결체의 치수, 기하학적 밀도 및 침적밀도, 표면조도 등의 물성을 측정하였다.

2. DUPIC 핵연료 제조

경수로 사용후핵연료를 건식으로 재가공하여 중수로 핵연료를 제조하기 위한 DUPIC 핵연료 제조공정을 개발하기 위해 천연 UO_2 와 모의 DUPIC 핵연료를 이용한 타당성 연구를 수행한 결과 OREOX 공정에 의해 사용후핵연료 분말의 소결성이 향상되는 것이 입증되었으며 이들 결과를 바탕으로 그림 1과 같은 DUPIC 핵연료 소결체 제조공정을 설정하고 DUPIC 소결체를 제조하였다.

2.1 재료

중수로핵연료 표준 사양을 만족하는 DUPIC 핵연료 제조를 위해 1986년 10월에 고리발전소에서 방출된 경수로 사용후핵연료 G23집합체의 B5, A1, B7, C8, D9의 5 개 연료봉으로부터 추출된 약 10 kg의 핵연료 분말을 사용하였다. 사용된 연료봉의 평균 연소도는 27300 MWD/MTU로 나타났다.

2.2 균질화된 분말 제조

경수로 사용후핵연료봉의 표면을 절개한 후에 산화공정을 통해 사용후핵연료 분말을 만들었다. 이 분말의 화학적 조성 등을 균질화시키기 위해 혼합공정을 수행하였으며 중성자를 계수하여 핵물질계량에 이용되는 DSNC(DUPIC Safeguards Neutron Counter) 측정장치와 화학분석 실험을 사용하여 균질도를 측정하였다.

2.2.1 균질도(homogeneity) 측정

2.2.1.1 DSNC 측정

10 개의 분말 시료에 대해 DSNC 장치로 분말 조성의 균질도를 측정된 결과 표준편차 4.3 %의 양호한 결과를 나타냈다. 따라서 적용된 혼합공정기술을 통해 균질화된 분말을 얻은 것으로 평가하고 이를 화학분석방법으로 확인하였다.

2.2.1.2 화학 분석

약 1g 정도씩 4 개의 분말 시료를 준비하여 균질도의 기준이 되는 U-235와 Pu-239의 조성 분포를 분석하였다. U-235의 경우 평균치와의 편차가 0.62~1.7 %를 나타냈으며, Pu-239의 경우 평균치와의 편차가 0.46~1.27 %를 나타냈다. 이들 값은 AECL에서 기준으로 설정한 균질도 편차 범위인 평균값 \pm 2.5 %를 만족하는 값으로 개발된 혼합기술로 균질 조성의 DUPIC 분말을 제조할 수 있음이 입증되었다.

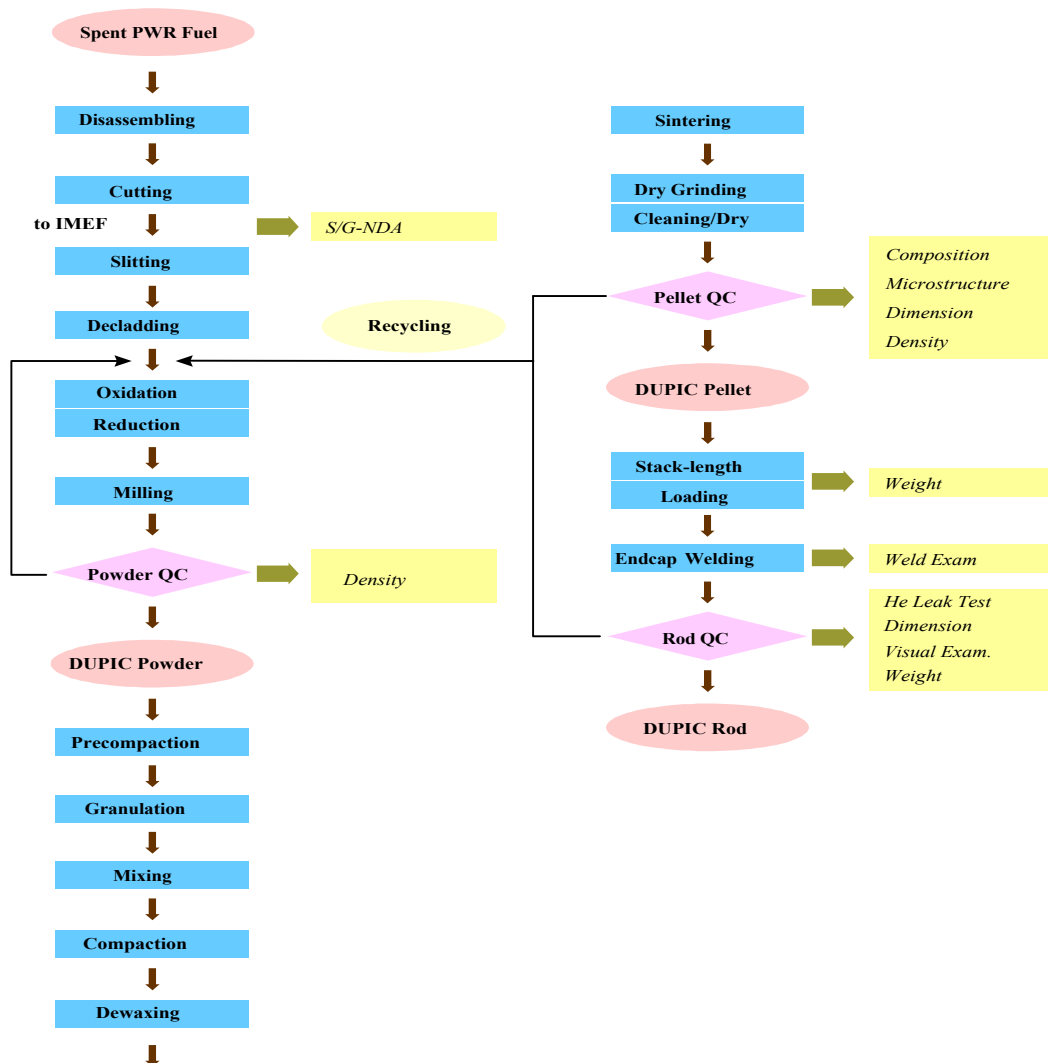


그림 1. DUPIC 핵연료 제조 공정

2.3 분말처리

균질화된 원료분말을 산화온도 450 °C, 환원온도 700 °C의 산화/환원 공정을 3회 수행하여 DUPIC 핵연료 원료 분말을 제조하였다. 산화/환원 공정을 거친 분말에 대해 450 rpm 및 600 rpm의 회전속도로 각각 10 분간씩 총 20분간 attrition 밀링을 수행하였다. 밀링 분말의 성형성을 향상시키기 위하여 0.2~0.4 wt%의 Zn stearate를 혼합하고 유동성 및 충전율을 높이기 위하여 62 MPa로 예비압분한 후에 조립화(mesh 18)를 시켜 DUPIC 핵연료 원료분말을 제조하였다.

2.4 성형 및 소결

공정조건중 성형압은 초기에 124 ~ 310 MPa 범위가 이용되었으나 186 MPa 이상의 성형압에서는 소결체의 외관에 결함이 발생하였다. 이에 따라 성형압을 낮추어 124 ~ 186 MPa의 압력으로 성형하였으며 1800 °C의 Ar-4%H₂ 분위기에서 10 시간 소결하였다. 제조된 소결체를 무심연마기에서 건식연마하여 소결체 직경 및 표면거칠기를 조정하였다.

3. DUPIC 핵연료 특성 분석

한 번의 실험을 한 배취 단위로 하여 약 500 g의 산화분말로 구성하였다. 각각의 배취에 대해 최적 공정조건을 찾기 위해 다음 표 1에 나태낸 바와 같이 4가지 조건으로 DUPIC 소결체를 제조하였다. 표 1에서 산화환원공정을 나타내는 1 OREOX는 산화/환원을 3 주기에 걸쳐 실시한 것을 의미하며 2 OREOXes는 6 주기에 걸쳐 산화/환원을 실시한 것을 의미한다. DUPIC 핵연료의 특성을 분석하기 위해 OREOX 공정후의 분말과 밀링공정 후의 분말 밀도를 측정하였으며, 분말처리 및 성형압력 등에 따른 소결체의 밀도 변화와 표면결함을 중심으로 분석하였다.

표 1. 시험별 공정조건

No.	공정
B01-08	1 OREOX + 밀링 + 예비압분 + 조립화 + 혼합(Zn 0.2 w%)
B01-09	2 OREOXes + 밀링 + 예비압분 + 조립화 + 혼합(Zn 0.4 w%)
B01-10-1	1 OREOX + 밀링 + 예비압분 + 조립화 + 혼합(Zn 0.4 w%)
B01-10-2	1 OREOX + 밀링 + 혼합(Zn 0.2 w%) + 예비압분 + 조립화 + 혼합(Zn 0.2 w%)

3.1 DUPIC 핵연료 분말 밀도 특성

분말 밀도 측정 결과는 그림 2와 같다. 산화/환원 공정을 거친 분말의 경우 겉보기 밀도는 0.42~0.80 g/cm³ 범위이고 탭밀도는 0.63~1.20 g/cm³ 범위를 나타냈으며, 밀링한 분말의 경우 겉보기 밀도는 2.29~2.41 g/cm³ 범위이고 탭밀도는 3.15~3.45 g/cm³ 범위를 나타내 유사한 연소도를 가진 G23-C13A 연료봉에 대한 측정 결과와 같은 경향을 보여주었다. 밀링 후에는 미분쇄 효과

에 의해 분말밀도가 3~4 배 정도 증가하였음을 알 수 있다. 산화/환원 과정을 6 회 수행한 분말의 밀도가 3 회 수행한 분말의 밀도보다 낮은 값을 나타내었으며 밀링공정후에는 유사한 값을 나타내었다. 또한 예비압분공정과 조립화 공정을 거쳐 제조된 분말의 겉보기밀도는 3.20 g/cm^3 , 탭 밀도는 3.94 g/cm^3 로 증가되었다.

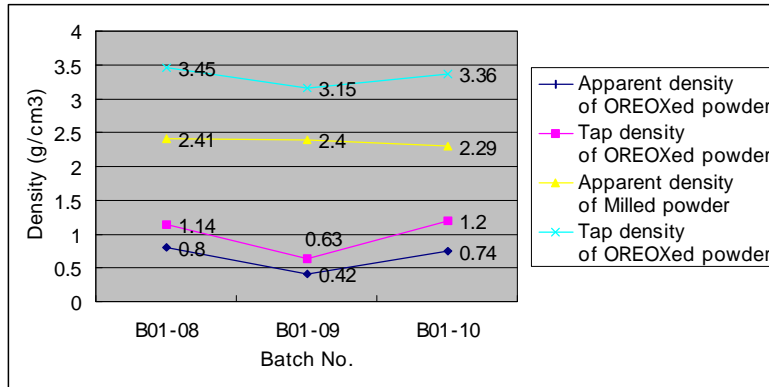


그림 2. DUPIC 핵연료 분말 밀도

3.2 DUPIC 핵연료 예비압분체 특성

DUPIC 핵연료 예비압분체의 특성을 분석하기 위하여 압분체의 기하학적 밀도를 측정하였다. 측정결과 $5.97 \text{ g/cm}^3 - 6.24 \text{ g/cm}^3$ 범위를 나타냈다.

3.3 DUPIC 핵연료 최종 성형체 특성

최종 성형 압력은 124~186 MPa로 설정하였으며 124 MPa, 155 MPa, 186 MPa 의 압력에서 성형된 성형체의 기하학적 밀도는 각각 6.52 g/cm^3 , 6.79 g/cm^3 , 6.84 g/cm^3 를 나타냈다. 그림 3 은 성형 압력에 따른 성형체의 밀도를 보여준다. 성형압력이 증가하면 성형체의 밀도도 증가하는 경향을 보여주었다.

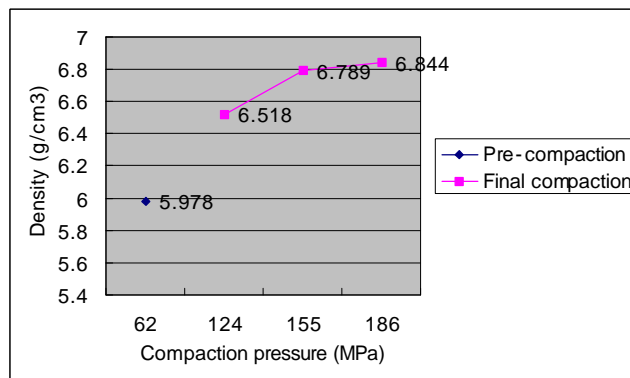


그림 3. DUPIC 핵연료 성형체 밀도

3.4 DUPIC 핵연료 소결체 특성

3.4.1 성형압의 변화에 따른 DUPIC 핵연료 소결체 밀도 변화

그림 4는 124 MPa로부터 186 MPa까지 성형압이 증가함에 따른 소결체의 밀도 변화를 보여준다. 성형압이 증가함에 따라 DUPIC 소결체의 침적밀도는 10.405 g/cm³에서 10.437 g/cm³로 증가하였다. 한편 기하학적 밀도는 10.377 g/cm³에서 10.396 g/cm³로 증가하다가 155 MPa 이상의 성형압에서는 감소하는 경향을 나타냈으며 186 MPa의 성형압에서는 10.36 g/cm³을 나타냈다. 이는 성형압이 일정한 수준 이상이 될 경우에는 크랙 등의 결함 발생 빈도가 증가하는 경향 때문에 기하학적 밀도가 감소되는 것으로 분석되며, 결함발생을 억제하기 위해서는 155 MPa 이하의 성형압을 유지할 필요가 있다.

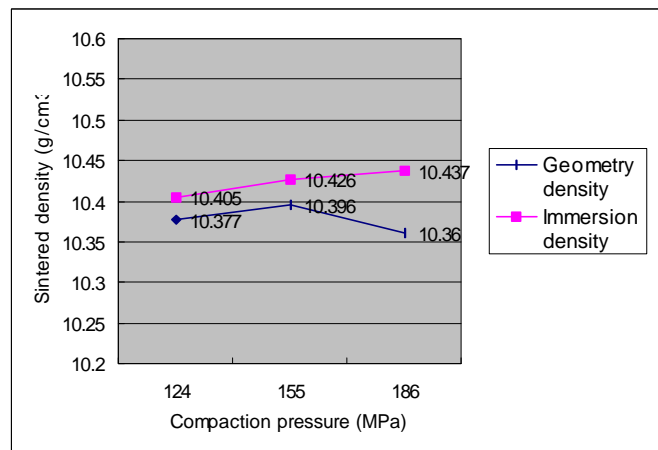


그림 4. DUPIC 핵연료 소결체 밀도

3.4.2 윤활제(Zn stearate) 첨가공정 변화에 따른 DUPIC 핵연료 소결체 밀도 변화

시험배취 B01-08, B01-09, B01-10-1의 경우 조립화 공정 후에 윤활제를 첨가하였지만 B01-10-2의 경우 밀링후에 0.2 w%를 첨가하고 조립화 공정 후에 추가로 0.2 w%를 첨가하였다. B01-10-2의 경우 소결 밀도 특성 및 표면 결함 특성이 양호하였다. 이는 윤활제의 분포가 고르게 되어 성형 및 소결 특성을 향상시킨 것으로 분석된다.

3.4.3 산화/환원 공정 횟수의 변화에 따른 DUPIC 핵연료 소결체 밀도 변화

143 MPa 이하의 성형압에서는 1-OREOX의 경우 소결밀도가 상대적으로 큰 값을 나타냈으며 155 MPa 이상의 성형압에서는 2-OREOXes의 경우 소결 밀도가 상대적으로 큰 경향을 보여주었다. 크랙 등 소결체의 결함은 성형압이 130 MPa 이상으로 높은 경우에 발생하는 경향을 보임에 따라 성형압을 130 MPa 이하로 낮출 필요가 있다. 따라서 이 경우에 만족할 만한 소결밀도를 얻기 위해서는 1-OREOX의 공정조건이 효과적이다. 또한 2-OREOXes의 경우 공정시간이 2 배가 소요되고 인력, 전원, 가스 등의 사용도 증가되어 바람직하지 않은 공정 조건으로 사료된다.

3.4.4 DUPIC 핵연료 연삭체 검사

3.4.4.1 DUPIC 핵연료 연삭체 어깨폭 측정

어깨폭은 핫셀에서 직접 측정하기가 곤란하여 어깨폭 부분을 사진 촬영한 후에 현상된 사진을 이용하여 측정하였다. 측정결과 0.86 mm로 요구조건을 만족하는 양호한 결과를 나타냈다.

3.4.4.2 DUPIC 핵연료 연삭체 표면조도 및 표면상태

연삭후 표면조도는 Ra 0.8 μ m 이하를 나타냈다. 124 MPa 이상의 성형압에서 소결체 표면에 크랙이 발생하였으며 성형압이 증가할수록 발생 빈도도 증가하였다. 124 MPa 이하의 성형압에서는 표면 상태가 양호하였으며 이 때 성형체의 밀도는 6.51 ~ 6.54 g/cm³ 범위를 나타냈다.

표 2. 확립된 DUPIC 핵연료 제조 공정 조건

No.	Process	Operating Conditions
1	OREOX Process	<ul style="list-style-type: none"> • Oxidation : 500 °C, 2 hrs, Air, 5.5 L/min • Reduction : 700 °C, 7 hrs, Ar/4%H₂, 13 L/min • Passivation : 80 °C, 4 hrs, Ar/2%O₂, 2 L/min • Heating rate : 4 °C/min
2	Milling Process	<ul style="list-style-type: none"> • Milling Time : 20 minutes - Zirconia ball - Ball size : 5 mm(φ) - for 10 mins at 450 rpm + for 10 mins at 600 rpm
3	Mixing Process 1	<ul style="list-style-type: none"> • 0.2 wt% zinc stearate after milling • Mix for 20 minutes
4	Pre-compaction	<ul style="list-style-type: none"> • 62 MPa • Die diameter : 14.34 mm
5	Granulation Proess	<ul style="list-style-type: none"> • Sieve #18(1 mm opening)
6	Mixing Process 2	<ul style="list-style-type: none"> • 0.2 wt% zinc stearate after granulation • Mix for 20 minutes
7	Final Compaction	<ul style="list-style-type: none"> • Final compaction pressure : 130 MPa • Die diameter : 14.34 mm
8	Dewaxing Process	<ul style="list-style-type: none"> • Dewaxing temperature / time : 800 °C / 3 hrs • Gas : Ar-4%H₂ flow rate 4 L/min • Heating rate : 4 °C /min
9	Sintering Process	<ul style="list-style-type: none"> • Sintering temp./time : 1800 °C / 10hrs • Ar/4% H₂, 8.0 L/min • Heating rate : 5 °C /min

4. 결 론

- 사용된 사용후핵연료의 평균 연소도는 27300 MWD/MTU를 나타냈으며 각 연료봉으로부터 추출된 소결체를 산화공정으로 분말화한 후에 혼합하여 하나의 원료 분말(롯데)을 제조하였으며

제조된 분말의 균질도 측정결과 평균값과의 편차가 2.7% 이하를 나타내 균일한 분말 로트를 제조하였음을 입증하였다.

- 산화/환원 공정을 통해 경수로 사용후핵연료를 분말처리하여 중수로 핵연료 표준사양을 만족하는 DUPIC 핵연료 소결체를 제조할 수 있음을 입증하였다.

- 성형압의 증가에 따라 DUPIC 소결체의 밀도는 증가하였으며 124 MPa 이하의 성형압 조건에서 건전한 소결체를 제조할 수 있었다.

- 표면 거칠기 기준을 만족하는 핵연료를 제조할 수 있는 건식 연삭 공정을 개발하였다.

- 실험결과를 바탕으로 DUPIC 핵연료 소결체 최적 제조공정을 표 2와 같이 확립하였다.

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 핵연료제조장비 및 검사기기 개발, 한국원자력연구소, KAERI/TR-1319/99, 1999. 5
- [3] 양명승 등, DUPIC 핵연료제조 및 공정기술 연구, 한국원자력연구소, KAERI/TR-1336/99, 1999. 6
- [4] 양명승 등, DUPIC 핵연료제조 및 공정기술개발, 한국원자력연구소, KAERI/RR-2022/99, 2000. 5
- [5] 김웅기 등, 2차 조사시험용 DUPIC 핵연료제조, 한국원자력연구소, KAERI/TR-1876/2001, 2001. 7
- [6] 김웅기 등, 3차 조사시험용 DUPIC 핵연료제조, 한국원자력연구소, KAERI/TR-1894/2001, 2001. 8
- [7] 김웅기 등, DFDF에서의 DUPIC 핵연료 소결체 제조 특성, 한국원자력연구소, KAERI/TR-2005/2002, 2002. 1