

핵연료 탈피복 방안 연구

김봉구*, 이정원, 양명승, 박현수
한국원자력연구소

요 약

DUPIC 핵연료 제조를 위해서 PWR 사용후핵연료의 피복관과 소결체를 분리하는 방법이 검토되었다. 약 50 cm의 PWR 사용후핵연료의 길이방향에 일정한 간격으로 구멍을 뚫어 산화하는 방법, 10~20 mm의 길이로 핵연료봉을 절단하여 산화하는 방법, 그리고, 핵연료봉의 길이 방향에서 피복관을 slitting하여 산화하는 방법에 대해 실험을 수행하였다. 실험 결과들로 보아 DUPIC 핵연료 제조 공정에 가장 적합한 방법으로는 핵연료봉 길이방향으로 slitting하여 산화하는 것이 가장 타당한 것으로 판명되었다.

1. 서 론

UO₂ 소결체가 상온보다 높은 온도에서 공기 또는 산소와 접촉하게 되면 산화가 일어나 U₃O₈로 상변화에 의해 분말[1]이 된다. 이때 밀도차이에 따른 부피팽창에 의해 발생하는 응력으로 소결체의 분말화에 따른 응력이 일어나 피복관 파괴를 유발시키는 것으로 알려져 있다. 이와 같이 UO₂ 소결체와 피복관을 분리하기 위한 실험은 50년대 말에서 60년대까지 수행되었다[2,3,4]. 그리고, UO₂ 소결체의 산화분말을 산화/환원 처리하면 재소결이 가능한 분말이 된다[5].

피복관과 사용후 UO₂ 소결체를 분리하는 탈피복 방법은 PWR 사용후핵연료의 재처리를 위해서 많이 연구되어 왔다. 재처리공정에 있어서 탈피복의 기본적인 공정으로 화학적 또는 기계적 방법, 화학적 및 기계적 결합방법, chop-leaching 방법, 그리고 산화시 UO₂에서 U₃O₈로 될 때 부피팽창을 이용한 산화 탈피복(oxidative decladding) 방법 등이 있다.

DUPIC 핵연료 제조를 위해서는 PWR 사용후핵연료를 처리하여 사용후 UO₂ 소결체와 피복관을 분리하여 분리된 핵연료를 재소결성이 있는 분말로 제조하는 것은 필수적이다. 즉, PWR 사용후핵연료를 건식처리하여 DUPIC 핵연료를 제조하기 위해서 먼저 PWR 사용후 핵연료집합체를 해체하고, 재소결성이 있는 분말을 만들기 위해 OREOX(oxidation and reduction of oxide) 공정을 행하기 전에 먼저 탈피복(decladding)을 해야 한다. 따라서, 본 연구에서는 재처리에서 이용한 탈피복 방법들을 검토하여 DUPIC 핵연료 공정에 가장 적합한 탈피복 방법을 찾고자 함에 목적이 있다. 이에 따라 PWR 피복관과 조사되지 않은 UO₂ 소결체를 이용하여 공기중 400℃에서의 탈피복 현상에 대해 실험하였다.

2. 문헌조사[6,7,8]

2.1 산화 탈피복 방법

UO₂ pellet 핵연료를 분쇄하여 피복관으로부터 분리하는 건식처리의 대표적인 산화 탈피복 방법에는 voloxidation과 AIROX 방법에서 사용하는 두 방법이 있다. 두 방법 모두 cubic 상의 UO₂가 밀도가 낮은 tetragonal 상(U₄O₉에서 U₃O₈ 조성영역)으로 산화될 때 부피팽창을 이용하는데 기초를 둔 것이다.

Voloxidation 방법

Voloxidation 공정에서는 절단된 핵연료가 400~500℃의 공기분위기에서 가열된다. 산화로 인하여 UO_2 가 U_3O_8 로의 상변화에 의한 부피팽창으로 인하여 핵연료 pellet가 분쇄된다. 산화된 핵연료가 dissolver에서 용해된 후에 hull과 잔류 미세입자는 세척되어 폐기물처리로 보내진다.

AIROX 방법

AIROX 공정은 핵분열물질의 함량조정을 위해 약간 농축된 fresh UO_2 분말의 첨가를 통하여 사용후핵연료의 산화분말을 직접 재순환하기 위해서 개발되었다. AIROX 개념에서는 절단 핵연료봉에 산화반응이 일어나는 pathway를 공급하기 위하여 핵연료봉의 길이 방향에 rotary punch를 이용하여 2.5~4.0cm의 간격으로 작은 구멍을 만든다. 공기중 400℃에서의 산화시 피복관은 구멍 옆을 따라 파괴되고, 핵연료가 분쇄된다. UO_2 에서 밀도가 낮은 U_3O_8 로 상변화에 의한 부피팽창이 피복관을 파괴하고 핵연료를 분쇄한다. 분말을 핵연료로 재순환하기 위해서는 수소분위기 600℃에서 UO_2 로 환원을 행하는 것이 필요하다. AIROX 공정은 피복관으로부터 99.9%의 UO_2 가 분리된다고 한다.

2.2 기계적 탈피복 방법

핵연료의 기계적 탈피복 방법은 재처리 공정에서 이점들이 있기 때문에 화학적 방법과 chop-leaching 방법보다 선호되고 있다. 기계적 탈피복의 주된 방법은 다음과 같은 기술에 기초하여 개발되어 왔다.

- 1) Pressing 기술; 특수한 die를 통한 pressing으로 핵연료를 피복관에서 제거
- 2) Slitting 또는 cutting 기술; hacksaw, abrasive disc 또는 milling cutter를 사용하여 핵연료를 자른 후 피복관을 벗겨내는 방법
- 3) 피복관 변형기술; rolling 또는 hydraulic pressing을 이용하여 피복관을 반경방향으로 변형시키는 방법
- 4) Expose Fuel, Agitate; 핵연료봉을 작은 조각으로 절단하여 ball mill에 넣어 회전에 의해 핵연료의 파괴를 야기시키는 방법. 핵연료가 분쇄될 때 핵분열생성물의 추가적인 방출이 일어난다.

2.3 산화 및 기계적 결합방법

핵연료 분리를 향상시키기 위하여 핵연료 fragments를 산화조에 넣어 공기중 고온(400~500℃)으로 가열하면서 회전하거나, 온도를 조절할 수 있는 ball mill에 넣어 회전하는 방법이다.

3. 실험방법

본 실험에서 사용한 피복관은 직경 9.69 mm, 두께 0.62 mm이고, UO_2 소결체는 직경이 8.2 mm, 밀도가 10.6 g/cc인 PWR 17×17 형이다. 먼저, 길이가 약 20 cm인 PWR 핵연료봉에 UO_2 소결체를 넣고, punching machine[9]를 이용하여 약 2.5 cm의 간격으로 구멍을 가공하였다. 그리고, 핵연료봉을 산화로[10]에서 450, 500, 550℃의 온도에서 압축공기를 100 cc/min로 흘리면서 산화하였다. 또한, 분말의 분리를 촉진시키기 위해서 Ar 분위기에서 온도를 650℃까지 올린 다음 4% H_2 +Ar 분위기에서 2 시간동안 환원하고, Ar 분위기에서 온도를 산화반응온도(450, 500, 550℃)까지 내린 후 산화반응시켰다.

피복관을 길이가 20~30 mm, 그리고, 1.7, 1.2, 1.05, 1.0, 0.9 mm인 피복관에 UO_2 소결체를 넣고, 이들을 Muffle furnace의 공기중 400℃에서 산화를 수행하였다. 그리고, 길이가 약 10~20 mm인 피복관에 UO_2 소결체를 넣고, 산화로[10]에서 압축공기를 100 cc/min로 주입하면서 400, 450, 480℃에서 산화를 수행하였다.

길이가 3, 5, 7, 10, 15 cm인 피복관에 길이 방향으로 폭이 1~1.5 mm인 slit을 내고, 피복관 내에 UO_2 소결체를 넣어 Muffle furnace의 공기중 400°C에서 산화를 수행하였다.

4. 결과 및 토의

4.1 Perforation

Fig. 1은 일정한 간격으로 구멍이 있는 핵연료봉을 450°C에서 20 시간, 500°C에서 22 시간, 550°C에서 21 시간동안 산화하고, 650°C에서 2 시간 환원, 450°C에서 2 시간동안 산화된 PWR 핵연료봉의 형상을 나타낸 것이다. 피복관 양단의 UO_2 소결체는 U_3O_8 분말로 되어 분리되었다. 이에 따라 피복관 양단의 형상은 반응전과 비교하여 변화가 없었다. 그리고, 일부의 hole에서만 피복관 파괴가 일어났으며, hole 사이에서 bulge 현상이 있었음을 알 수 있다. 그러나, 피복관과 산화된 분말의 분리는 완전하게 일어나지 않았다.

산화온도에 따라 약간의 차이는 있지만, hole 사이가 bulge만 되고, 탈피복이 일어나지 않는 것은 반응물이 팽창하여 피복관 파괴가 일어나기 전에 기체 확산을 저지하는 장애물(plug)을 형성하였기 때문이라 판단되며, 이러한 plug는 환원분위기(4% H_2 -85%Ar)에서 환원하여, 공기분위기에서 계속 산화하였지만 탈피복은 진행되지 않았다. 이와 같은 결과는 알려진 AIROX 산화탈피복 실험 결과와는 일치하지 않았다.

4.2 Rod-cut

피복관 내부에 UO_2 소결체가 있는 길이가 2~3 cm인 핵연료를 muffle furnace의 공기중 400°C에서 약 7 시간동안 산화를 수행하였다. 2시간 산화된 후, 산화된 분말이 피복관과 분리되지 않고 sieve에 있는 것을 확인되어 진동을 주어 분말을 분리하였으나, 피복관 내부에 탈피복되지 않은 소결체가 남아 있는 것을 확인되어 3 시간동안 재산화를 수행하였다. 다시 산화가 진행됨에 따라 분말화가 더 진행되었다. 그러나, 산화분말을 sieving한 후에 피복관 내부에 분말화되지 않은 소결체 일부가 남아 있는 것을 확인할 수 있었다. 이를 다시 400°C에서 2 시간동안 다시 산화시켰다. 피복관 내부의 잔류 소결체가 산화가 더 진행되었음을 확인할 수 있다. 약간의 진동으로 분말은 sieving되었다. 그리고, 길이가 3 cm인 피복관 내에 남아 있는 분말의 일부는 강한 충격을 가함으로써 제거되었다. 그러나, 피복관 내부에 일부 접촉된 분말은 제거되지 않았다.

위와 같은 실험결과로부터 산화가 진행되는 동안 진동을 가하는 것이 탈피복을 향상시킬 것으로 판단되었다. 이에 따라 400°C에서 산화를 진행하면서 30 분 또는 1 시간 간격으로 주기적인 진동을 주었을 경우 탈피복 정도와 시간을 관찰하였다. 그리고, 6 시간 산화를 수행하였다. 산화후 피복관 내부에는 산화시 발생하는 열과 응력에 의해 피복관과 강한 결합으로 분리되지 않은 산화우라늄이 있었다. 산화후 탈피복 정도를 알기 위해 피복관의 무게를 측정하였고, 산화실험후의 피복관 무게를 측정하여 피복관에 남아 있는 우라늄산화물의 잔류량을 측정하였다. Table 1에서 보는 바와 같이 피복관 길이가 길수록 피복관에 남아있는 산화우라늄의 양이 많다. 여기서, 피복관의 산화는 고려하지 않았다. 위의 피복관 중에서 길이가 3 cm인 피복관은 탈피복이 완전하게 되지 않았다. 이들을 400°C에서 약 5 시간(총 산화시간은 10 시간)동안 재산화시켰으나, 더 이상의 분리는 일어나지 않았다.

또한, 피복관의 길이가 각각 1.7, 1.2, 1.05, 1.0, 0.9 mm인 피복관에 UO_2 소결체를 넣은 후, 이들을 400°C에서 5 시간 산화를 수행하였다. 이들의 탈피복 결과를 table 2에 나타내었다. 각 핵연료의 회수율은 table 3에서 보는 바와 같이 피복관 길이가 약 10 mm인 경우에는 회수율이 98% 이상이었다. 그러나, 길이가 17 mm일 때에는 회수율이 89.3%로 나타났다. 이상과 같은 결과로 보아 탈피복을 위해서는 50 cm 사용후핵연료를 15 mm 미만으로 cutting하는 것이 효율적이라 판단된다.

앞의 결과를 바탕으로 길이가 약 1~2 cm인 피복관에 UO_2 소결체를 넣고, 분위기를 조절할 수 있는 산화로에서 산화를 수행하였다. 압축공기를 100cc/min로 주입하면서 400, 450, 480°C에서 약 4 시간동안 산화를 수행하였다. 이들의 탈피복 결과를 table 3에 나타내었다. Table 3에서 보는 바와 같이 핵연료 길이가 10 mm이고, 산화온도가 400°C에서 97.4%의 가장 좋은 탈피복율을 나타내었다. 그러나, 회수율을 향상시키는 방법을 고려하였다.

4.3 Slitting

Fig. 2는 slitting된 핵연료봉에 UO_2 소결체를 넣고 공기중 400°C에서 약 9 시간 산화시킨 후의 산화된 분말을 분리한 후에 피복관 양상을 보여주고 있다. 이 그림에서 보는 바와 같이 소결체는 산화되어 분말화되어 피복관으로부터 분리되었으며, 소결체의 산화에 의한 부피팽창으로 slit이 벌어졌음을 알 수 있다. 벌어진 slit의 폭은 일정하지는 않으나 약 5~7mm 정도였다. 피복관과 잔류 산화우라늄은 진동 또는 충격을 가한 후 산화우라늄이 완전히 분리되었다. Table 4에서 보는 바와 같이 slitting하였을 때가 recovering rate가 99.9% 이상으로 가장 우수한 것으로 나타났다. 분리된 산화우라늄의 무게 증가는 약 3.6%로 이론적 무게 증가 약 4%에는 미치지 못해 산화가 완전히 이루어지지 않았음을 알 수 있고, 산화분말을 sieving한 후에 산화에 의한 분말이 되지 않은 잔류소결체를 확인할 수 있었다. 따라서, slitting을 적용할 때에는 산화동안에 소결체의 완전 분말화가 이루어지도록 하는 방안이 강구되어야 할 것으로 판단된다.

5. 결 론

DUPIC 공정에서의 탈피복 방법으로는 산화방법을 채택하기로 되어 있다. 이에 따라 약 50 cm의 PWR 사용후핵연료의 길이방향에 일정한 간격으로 구멍을 뚫어 산화하는 방법, 10~20 mm의 길이로 핵연료봉을 절단하여 산화하는 방법, 그리고, 핵연료봉의 길이 방향에서 피복관을 slitting하여 산화하는 방법에 대해 실험을 수행하였다.

이상과 같은 실험 결과들로 보아 앞의 두 방법으로 산화에 의해 핵연료봉으로부터 UO_2 의 제거율은 방법에 따라 차이는 있으나, DUPIC 핵연료 제조 공정에 적용하기 어려운 것으로 판단되었다. 그리고, 핵연료봉 길이방향으로 slitting하는 것이 가장 타당한 것으로 판명되었다. 이에 따라 핵연료의 길이방향으로 slitting하기 위한 기기 개발이 진행되고 있다.

6. 참고문헌

1. K.K. Bae, B.G. Kim, Y.W. Lee, M.S. Yang and H.S. Park, "Oxidation behavior of unirradiated UO_2 pellets", J. Nucl. Mater., 209(1994)274-279.
2. L.A. Hanson, "Removal of irradiated UO_2 fuel from the cladding by controlled oxidation", Atomic International, NAA-SR-3591, 1959.
3. J. Guon, J.E. Bodine, R.J. Sullivan and F.W. Gandolfo, "Low decontamination reprocessing studies on irradiated uranium dioxide reactor fuel", Atomic International, NAA-SR-7136, 1962.
4. G.E. Brand and E.W. Murbach, "Pyrochemical reprocessing of UO_2 by AIROX; Summary report", Atomic International, NAA-SR-11389, 1965.
5. B.G. Kim, K.W. Song, J.W. Lee, K.K. Bae, M.S. Yang and H.S. Park, "Characteristics of Powder Prepared from Unirradiated UO_2 Pellets by Oxidation and Reduction Method", J. Kor. Cera. Soc., Vol.32, No.4, pp.471-481,

1995

6. F.M. Hammad, H.R. Higgy and A.A. Abdel-Rassoul, Mechanical decladding of nuclear fuel elements, J. British Nucl. Soc., 1971.
7. G. Matchert and M. Bourgeois, Mechanical decladding stainless steel clad oxide fuels, Report CEA-R-4469, 1973 (ORNL-TR-2788).
8. W.D. Bond, J.C. Mailen and G.E. Michaels, Evaluation of methods for decladding LWR fuel for pyroprocessing-based reprocessing plant, ORNL-TM-12104 (1992)
9. 양명승 외, “핵연료제조 및 품질관리 기술개발“, KAERI/RR-1471/94, 한국원자력연구소, 과학기술처, 1995
10. 양명승 외, “핵연료제조 및 품질관리 기술개발“, KAERI/RR-1311/93, 한국원자력연구소, 과학기술처, 1994

Table 1. 길이가 2~3 cm인 절단 핵연료봉의 탈피복율

clad length (cm)	clad weight before oxidation	clad weight with residual uranium oxide after oxidation	weight of residual uranium oxide inside cladding after decladding	recovering rate (%)
3	3.4908 g	4.3117 g	0.8209 g	~95
3	3.2370 g	3.6032 g	0.3662 g	~97
2	2.1444 g	2.3227 g	0.1783 g	~98
2	2.1302 g	2.1997 g	0.0695 g	~99
<2	1.7983 g	1.8718 g	0.0735 g	~99

Table 2. 길이가 1~2 cm인 절단 핵연료봉의 탈피복율

clad length (cm)	clad weight before oxidation	clad weight with residual uranium oxide after oxidation	weight of residual uranium oxide inside cladding after decladding	recovering rate (%)
1.7	1.9678 g	3.1760 g	1.2082 g	89.3
1.2	1.4189 g	1.5345 g	0.1156 g	98.3
1.05	1.2713 g	1.3609 g	0.0896 g	98.5
1.0	1.1793 g	1.2771 g	0.0978 g	98.3
0.9	1.1095 g	1.2075 g	0.098 g	98.2

Table 3. 길이가 1~2 cm인 절단 핵연료봉의 산화온도에 따른 탈피복율

clad length (cm)	oxidation temperature(°C)		
	400	450	480
2	64.1	37.6	65.0
1	97.4	75.4	85.1

Table 4. Slitting된 핵연료봉의 탈피복율

clad length (cm)	total weight of UO_2 before oxidation	total weight of remained U_3O_8 on cladding surface	recovering rate (%)
3, 5, 7, 10, 15	213.482 g	0.0339 g	> 99.9

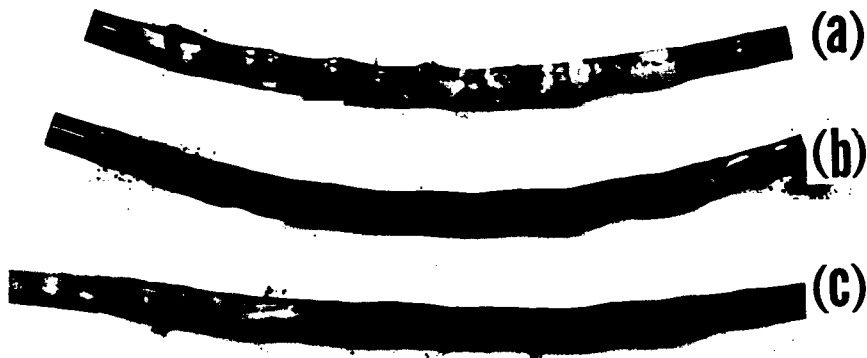


Fig. 1. 일정한 간격의 구멍이 있는 핵연료봉의 산화온도에 따른 형상
(a) 450°C, (b) 500°C, (c) 550°C

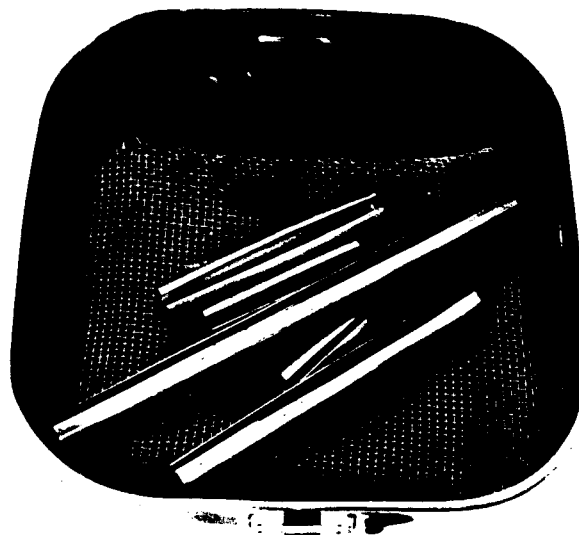


Fig. 2. Slitting된 핵연료봉의 산화후 형상