

사용후핵연료의 탈피복 및 건식 분말화/혼합 장치의 타당성 분석
Feasibility Study of a Device for Decladding and Dry Pulverizing/Mixing Spent Fuel

정재후, 윤지섭, 홍동희, 김영환, 박기용, 진재현(한국원자력연구소)
 JaeHoo Jung, JiSup Yoon, Donghee Hong, Younghwan Kim, Jaehyong Park, Gheeyong Park(KAERI)

Abstract

The dry pulverizing/mixing device is used to deal with the spent fuels for the safe disposal. The separated pellets from hulls by a slitting device are put and oxidized from UO_2 solid pellet to U_3O_8 powder in the device. The device have been developed based on a voloxidation method which is one of several dry de-cladding methods. We have benchmarked dry de-cladding methods, analyzed applicability to the advanced spent fuel management process, integrated and compared several configuration, and finally derived detailed specifications proper to requirements for the device. Also, thermal characteristics of the device such as thermal stress and strain have been analyzed by the commercial software, I-DEAS, and the reliability of the results have been verified by the KOLAS(KOrea Laboratory Accreditation Scheme). The UO_2 solid pellets are put in the device which has a capacity of 20 kgHM per a batch, heated up about 600 °C in the air environment. Then, the UO_2 solid pellets are oxidized into the U_3O_8 powder, and the powder is collected in a special vessel. The device has been designed and developed as follows: the multi-staged fine hole meshes are used to reduce the size of the powder gradually, heat and air(oxygen) are supplied continuously to reduce the reaction time, and slight vibration effect are applied to collect powder cling to the device.

Key Words : Dry Pulverizing/Mixing Device, Spent fuel Slitting, Wet Method, Voloxidation, Mesh Pellet, Decladding Method

1. 서 론

사용후핵연료는 원자력을 이용한 전력생산에 따라 필연적으로 발생하는 부산물로서, 이를 안전하고 효율적으로 관리할 수 있는 기술을 개발하기 위한 연구가 지속적으로 수행되고 있다. 특히, 핵연료를 재활용 또는 처분을 위한 공정의 전처리 단계인 핵연료 탈피복 장치와 건식 분말화/혼합기술은 액체 폐기물이 다량 발생하는 종래의 방법에 의한 기술을 지양하고, 공정 폐기물량의 감소 등 여러 측면에서 유리한 방법을 이용하는 기술에 대한 관심이 집중되고 있는 추세이다. 사용후핵연료의 탈피복 방법으로 운전 방식에 따라 습식법과 건식법으로 분류하며, 건식법을 좀더 세분화하면 화학적 방법과 기계적 방법으로 분류한다. 화학적 탈피복은 화학 반응물과 연료 물질 또는 피복관 재료와의 화학 반응을 기초로 탈피복을 하는 것이다. 탈피복 장치는 핵연료봉 절단장치로부터 절단된 250 mm의 핵연료봉을 기계적인 도구를 사용하여 핵연료봉과 펠렛을 분리하는 장치이다. 건식 분말화/혼합 장치는 분리된 펠렛을 건식 분말화/혼합 장치 속에 넣어 고온 환경에서 UO_2 펠렛을 U_3O_8 으로 산화시켜 분말화하기 위한 장치이다. 본 연구에서는 탈피복 장치와 건식 분말화/혼합 장치의 일체/분리형 및 수직/수평형 구조에 대한 장·단점을 도출하고, 두 장치간의 타당성을 분석하였다.

2. 탈피복 기술

2.1. 탈피복 기술의 개념

경수로형 사용후핵연료의 재활용 공정 중의 첫 번째 단계는 UO_2 연료와 지르코늄 피복관을 분리하는 공정으로, 이러한 탈피복 공정들의 기술현황을 분석하였으며, 사용후핵연료 해체 공정에 있어서 필수적인 금속 절단 기술에 대해서도 평가하였다. 본 연구에서는 탈피복 연료의 회수율을 높이고 안전성 및 적용성의 관점에서 운전 방식을 확립하기 위하여 이러한 소결체 인출 기술의 조사·분석을 수행하였다.

2.2. 탈피복의 종류 및 방법

탈피복은 건식 분말화/혼합 공정의 전 단계이며, 이의 종류로는 굴림/늘이기법, 절단/파쇄법, 전기이동법, 절단/용해법, Zircex 법 등이 있으며, 세부적인 내용은 다음과 같다.

2.2.1. 굴림/늘이기법

굴림/늘이기법 기술은 이집트에 의해 시도된 것으로 최근에는 일본에서도 이 기술에 대한 시험을 수행한 바 있다. 이 기술은 사용후핵연료봉 자체를 다단계 된 롤러사이로 통과시켜 축 방향으로 길이를 늘이고, 반경 방향의 변형을 유도함으로써 사용후핵연료봉 내부의 연

료소자가 으깨어지게 하여 피복관과 연료를 분리하도록 한 장치이다. 일본의 Kobe steel 사에서는 알루미늄과 UO_2 펠렛을 이용하여 제조한 모의 사용후핵연료봉을 대상으로 탈피복 시험을 수행하였으며, 그 결과, 알루미늄의 경우는 99.9 % 정도의 회수율을 보였고, 이때 분말들의 평균 크기는 약 200 μm 임을 발표하였다. 그러나 이 기술은 아직까지 조사된 사용후핵연료봉을 이용한 시험을 거치지 않았기 때문에 조사로 인한 피복관과 내부 연료의 기계적 물성 변화에 따른 적합성 여부를 실증하지는 못한 상태이다. 또한, 기계 장치의 빈번한 교체와 보수가 요구될 수 있는 단점을 가지고 있다.

2.2.2. 절단/파쇄법

절단/파쇄 기술은 프랑스에 의해 시도된 것으로 사용후핵연료봉을 약 70 mm 길이로 절단한 후 Hammer Mill로 1차 파쇄시키며, 곧이어 Ball Mill에 의해 2차 파쇄시킴으로써 피복관과 펠렛을 분리한다. 사용후핵연료로 시험한 결과 0.14~0.8 %의 플루토늄이 손실되었다.

2.2.3. 전기 이동법

전기 이동법은 미국의 ANL(Argonne National Lab.)에서 사용후핵연료 건식 탈피복을 위하여 개발한 기술로서, 사용후핵연료봉을 일정한 길이로 절단한 후 $CaCl_2$ - CaF_2 용융염이 들어 있는 전기 분해실의 음극 바스켓에 담고 전류를 통함으로써 지르칼로이 합금체 중 지르코늄과 주석 성분이 양극으로 되는 원리를 이용한 것이다. 전기 이동법 기술은 탈피복 속도가 느리고 연료 물질들이 액체 카드뮴과 함께 양극이 되는 단점을 가지고 있으며, 이를 해결을 위한 중류 공정이 필수적으로 필요하다.

2.2.4. 절단/용해법

절단/용해법은 종래의 습식 재처리 공정 중 Head-end 단위공정의 절단/질산용해공정과 일치하는 탈피복 방법으로 연료 물질회수 면에서는 99 % 이상의 탁월한 성능을 나타낸다. 그러나, 고온 건식처리법에 있어서 절단/용해법의 채택은 후속공정으로 직접 탈진공정이나 침전/배소 공정에 의한 산화분말 제조공정이 추가로 소요되며, 이로 인한 폐기물 발생량 증가와 공정의 복잡성을 초래할 수 있다.

2.2.5. Zircex 법

Zircex 기술은 당초 U-Zr 합금 연료의 재처리 공정에서 사용된 탈피복 방법으로 잘 알려진 기술로서 Zircaloy-4의 탈피복에도 그 적용이 가능하다. 피복관의 지르칼로이 합금체 중에서 지르코늄과 주석 원소들을

염화물 반응에 의해 휘발성 물질로 전환시켜 수화 반응에 의해 산화분말로서 회수시키는 방법이다. 그러나, 이 기술은 장치의 부식 문제가 가장 큰 문제로서, 특별한 내식 재료가 개발되지 않는 한 금이나 몰리브덴계 재료로 제작한 용기만이 견딜 수 있다.

3. 건식 분말화/혼합 기술

3.1. 건식 분말화/혼합 기술의 개념

사용후핵연료의 탈피복은 운전 방식에 따라 습식법과 건식법으로 분류하며, 건식법을 좀더 세분화하면 화학적 방법과 기계적 방법으로 분류한다. 본 연구에서는 Voloxidation을 모체로 하는 장치로서 기계식 탈피복 장치로부터 분리된 UO_2 펠렛을 가열기에 투입한 후, UO_2 펠렛을 공기 분위기에서 약 600 $^{\circ}C$ 이상으로 가열함으로써 UO_2 펠렛을 U_3O_8 의 분말로 산화되며, 산화된 U_3O_8 분말은 용기에 수집되며, 공정 개념은 다음과 같다. 반응기 내부에 다단계 다공판 메쉬를 장착하여 분말화 입도를 단계적으로 향상시킬 수 있도록 하고, UO_2 의 산화 반응에 요구되는 산소와 반응열을 연속적으로 공급하여 반응 시간을 줄일 수 있게 하고, U_3O_8 의 분말을 회수함에 있어 장치에 묻어 있는 분말까지 회수할 수 있도록 한다.

3.2. 건식 분말화 혼합 기술의 종류 및 방법

현재까지 알려진 건식 처리의 산화 탈피복 방법에는 AIROX와 Voloxidation 방법이 있다. 이들은 UO_2 소결체를 분쇄하여 피복관으로부터 분리하기 위해서 적용되었다. 두 방법 모두 Cubic 상의 UO_2 가 밀도가 낮은 Tetragonal 상(U_4O_9 에서 U_3O_8 조성 영역)으로 산화될 때 부피 팽창을 이용하는데 기초를 둔 것이다. Voloxidation 공정에서 짧게 잘린 핵연료는 산화시 Tritium을 방출하여 다음 재처리 공정에서 Tritium의 동위 원소 혼합을 피하기 위한 것이다. AIROX 공정은 산화물 핵연료를 분쇄하고 탈피복하기 위하여 산화 반응을 이용한다. 그리고 분말된 산화물은 일정한 농축도를 맞춘 후에 핵연료로 직접 순환될 수 있다.

3.2.1. Airox 방법

Airox 공정은 핵분열 물질의 함량 조절을 위해 약간 농축된 순수 UO_2 분말의 첨가를 통하여 핵연료의 산화 분말을 직접 재수환하기 위해서 개발되었다. AROX 개념에서는 절단에 의해 핵연료봉 양단이 제거되고, 산화 반응이 일어나도록 공기를 공급하기 위한 수단으로 핵연료봉에 길이 방향에 2.5~4 mm의 간격으로 작은 구멍을 연속적인 Rotary punch를 이용해 만든다. 공기 중

400 ℃에서의 산화시 피복관은 구멍 열을 따라 파괴되고, 핵연료 펠렛이 분쇄된다. U_3O_8 으로의 완전한 산화가 요구되는 것은 아니다. Cubic 상에서 밀도가 낮은 Tetragonal 상으로 상 변이가 일어날 때, 관련된 부피 팽창이 피복관을 파괴하고 소결체를 분쇄한다. 분말을 핵연료로 재순환하기 위해서는 수소 분위기 600 ℃에서 UO_2 로 환원을 행하는 것이 필요하다. AIROX 공정은 피복관으로부터 99.9 %의 UO_2 가 분리된다.

3.2.2. Voloxidation 방법

Voloxidation 공정에서는 절단된 핵연료가 400~500 ℃의 공기가 많은 분위기에서 가열된다. 산화로 인하여 UO_2 가 U_3O_8 으로 변위가 일어난다. 이와 같은 상 변화에 의한 부피 팽창으로 인하여 핵연료 펠렛이 분쇄된다. 산화된 핵연료가 Dissolver에서 용해된 후에 Hull과 잔류 미세 입자는 세척되어 폐기물 처리로 보내지는 방법을 말한다.

4. 건식 분말화/혼합 기술의 국내·외 기술 개발

4.1. 국내·외 기술

건식 분말화 혼합 기술에 대한 기존 공정에 대한 기술을 보면 국내의 기존 공정 기술로는 차세대관리공정 개발과 DUPIC이 있으며, 국외의 기존 공정 기술로는 미국의 AI 사, DOE, ANL, ORNL와 영국의 BNFL 사, 프랑스의 Cadarache 사 등이 있다. 이들의 국내·외 기술은 표 1, 2에서와 같다.

표 1. 국외의 기술

구분	내용
국외	<ul style="list-style-type: none"> ○ AI (Atomic International) 사 <ul style="list-style-type: none"> · 1960년대에 건식 재처리의 한 분야로 시작 · 연구된 건식 공정 기술의 종류 : 산화된 핵연료의 산화-환원법, 금속 핵연료의 수소화-탈수소화법, 탄화물 핵연료의 산화-환원법 등 ○ DOE (Department Of Energy) <ul style="list-style-type: none"> · 사용후핵연료 중 특히 산화 우라늄 핵연료의 처분을 위한 효율적인 전처리 방안 · 고온 건식 용융염 전해 정련에 의한 우라늄 및 TRU의 분리 공정 · 1996년부터 연구를 체계적으로 수행 ○ ANL (Argonne National Lab.) <ul style="list-style-type: none"> · Hot Examination Facility에 100 kgHM/batch 용량의 Pilot scale 금속 전환 실증시설을 건설하기 위해 2004년 완료 목표로 현재 시설 설계 연구 수행 중 ○ ORNL (Oak Ridge National Lab.) <ul style="list-style-type: none"> · Kilorod와 Voloxidation 기술 개발도 부분적으로 유사한 공정을 이용하여 수행
	<ul style="list-style-type: none"> ○ BNFL 사 <ul style="list-style-type: none"> · 1963년부터 분말혼합 기술을 축적해왔으며, 1970~1988년까지는 Sellafield에 있는 원형 고속증식로 시설에서 Blending 기술을 적용
	<ul style="list-style-type: none"> ○ Cadarache 시설 <ul style="list-style-type: none"> · 현재 Cadarache 시설에서 고속증식로형 혼합 핵연료 제조 기술을 이용 · Coca (Cobroyage Cadarache) 공정을 사용한 15 tHM/y 규모의 경수로형 혼합핵연료 제조시설 보유

표 2. 국내의 기술

구분	내용
국내	<ul style="list-style-type: none"> · 건식 탈피복 중 공기 산화법(Voloxidation)을 모체로 한 사용후핵연료의 탈피복/분말화가 하나의 장치 내에서 이룩되도록 한 장치 · 사용후핵연료봉으로부터 UO_2 펠렛과 피복관을 분리하기 위해 원통형의 수직 반응기 내부에 수직 스크류를 장착 · 반응열을 공급하기 위해 반응기 내부에 원통형의 가열로를 설치 · UO_2 펠렛을 U_3O_8 분말로 산화하기 위해 공기 분위기에서 약 500 C로 가열 · 절단된 사용후핵연료봉 길이 30 mm 사용
	<ul style="list-style-type: none"> · 25cm로 절단된 사용후핵연료봉의 피복관을 탈피복 함 · UO_2 Pellet을 산화환원(Oreox)로 투입하여 분말화 하는 방법 · Tray에 Pellet을 고르게 펴고 가열하여 산화하는 방법으로 공기와 접촉하는 면적이 작아 한번에 100~200g 정도의 사용후핵연료 밖에 분말화 하지 못함 · 산화 환원로에 소요되는 시간은 1 Batch 당 약 4 시간 정도 소요

5. 일체형 및 분리형 탈피복/건식 분말화 장치

5.1. 수직형 및 수평형 탈피복 장치 분석

수직형 및 수평형 탈피복 장치에 대한 설계·제작, 작업 공정, 장치 설치, 운전, 유지·보수 등을 비교·분석하였으며, 그 분석 결과는 표 3과 같다.

표 3. 수직형 및 수평형 탈피복 장치에 대한 분석

장치 내용	수직형 탈피복 장치	수평형 탈피복 장치
설계/제작	· 설계/제작이 용이함 · 안전성이 좋음	· 설계상 좋지 않음 · 안전성이 좋지 않음
작업 공정	· 펠렛/Hull 수집 용이함 · Blade 마모가 적음	· 작업시 불안정함 · Blade의 마모가 큼
장치 설치	· 바닥에 고정할 필요가 없음	· 바닥에 고정
운전	· 고장이 적고, 운전이 용이함 · 장치의 흔들림이 적음(수직상하 운동) · 기계에 무리 적음 · 기계와의 간섭이 없음 · 작업의 효율성이 좋음	· 운전이 용이치 않음 · 장치의 흔들림이 심함(수평좌우 운동) · 기계에 무리가 많음 · 작업의 효율성이 떨어짐
유지/보수	· 용이함	· 용이하지 않음
분석 결과	· 탈피복 장치에 대한 비교·분석 결과, 수직형 탈피복 장치로 설계·제작하는 것이 타당하다고 판단됨	

5.2. 수직형 및 수평형 탈피복 장치도

수직형 및 수평형 탈피복 장치에 대한 설계·제작, 작업 공정, 장치 설치, 운전, 유지·보수 등을 비교·분석하였으며, 그 분석한 장치도 그림 1에서 보는 바와 같다.

