경수로 사용후핵연료를 이용한 중수로용 핵연료 제조공정 개발
(Development of DUPIC Fuel Fabrication Process Using Spent PWR Fuel)

한국원자력연구소 김웅기*, 김수성, 박근일, 이재원, 김종호, 이정원, 양명승

1. 서 론

본 연구에서는 DUPIC 핵연료 조사시험 및 성능 평가를 위하여 연구용 원자로에서의 조사시험을 계획하고 조사시험 사양에 적합한 DUPIC 핵연료를 제조하기 위해 8.868 kg (U-base)의 경수로 사용후핵연료를 DFDF로 운송하고 제조 공정 조건 확립을 위해 성형압 등의 제조공정 조건을 변화시키면서 DUPIC 핵연료 소결체를 제조하고 특성을 분석하였다[1,2].

실험결과를 바탕으로 조사시험용 DUPIC 핵연료 소결체의 사양을 만족시킬 수 있는 DUPIC 핵연료 제조 공정을 확립하고자 하였다.

2. 실험방법

본 실험에 사용된 사용후핵연료는 G23집합체의 B5, A1, B7, C8, D9 등 5 개 연료봉으로부터 추출되었으며 평균 연소도는 27300 MWD/MTU를 나타냈다. 사용후핵연료봉의 표면을 절개한 후에 산화공정을 통해 사용후핵연료 분말을 추출하고 추출된 분말의 화학적 조성을 균질화시키기 위해 혼합공정을 수행하였으며 화학분석 방법을 이용하여 균질화를 확인하였다. 약 1g 정도씩 4 개의 샘플에 대해 균질도의 기준이 되는 U-235와 Pu-239의 분포를 분석하였다. U-235의 경우 평균치와의 편차가 0.62~1.7 %를 나타냈으며, Pu-239의 경우 평균치와의 편차가 0.46~1.27 %를 나타냈다. 편차가 5%보다 훨씬 작아 적용된 혼합공정을 통해 균질화된 DUPIC 분말 로트를 제조하였음을 확인하였다.

균질화된 원료분말을 산화온도 450 ℃, 환원온도 700 ℃의 OREOX 공정을 3회 수행하여 DUPIC 핵연료 원료 분말을 제조하였다. OREOX 공정을 거친 분말에 대해 450 rpm 및 600 rpm의 회전속도로 각각 10 분간씩 총 20분간 attrition 밀링을 수행하고 유동성 및 충진율을 높이기 위하여 62 MPa로 예비압분한 후에 조립화(mesh 18)를 시켜 DUPIC 핵연료 원료분말을 제조하였다. 최종 성형은 124 ~ 186 MPa의 가압력으로 수행되었다. 원활한 성형을 위해 첨가된 윤활제(zinc stearate) 제거를 위해 성형체를 탈왁스로에 넣고 환원성 분위기(Ar-4%H2)하 800℃에서 2시간 가열하여 탈왁스처리하였다. 탈왁스 처리한 성형체를 수소의 환원성 분위기(Ar-4%H2)하 1800 ℃에서 10 시간동안 소결하였다. 제조된 소결체를 무심연마기에서 건식연마하여 소결체 직경 및 표면거칠기를 조정하였다.

3. 결과 및 고찰

OREOX 분말의 경우 겉보기 밀도는 0.42~0.80 g/cm^3 범위이고 탭밀도는 0.63~1.20 g/cm^3 범위를 나타냈으며, 밀링한 분말의 경우 겉보기 밀도는 2.29~2.41 g/cm^3 범위이고 탭밀도는 3.15~3.45 g/cm^3 범위를 밀링 후에 미분쇄 효과에 의해 분말밀도가 3~4 배 정도 증가하였다. 124MPa, 155MPa, 186MPa 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 1은 성형압의 변화에 따른 소결체의 밀도 변화를 보여준다. 성형압이 증가함에 따

라 DUPIC 소결체의 침적밀도는 10.405 g/cm^{3}에서 10.437 g/cm^{3}로 증가하였다. 한편 기하학적 밀도는 10.377 g/cm^{3}에서 10.396 g/cm^{3}로 증가하다가 155 MPa 이상의 성형압에서는 감소하는 경향을 나타냈으며 186 MPa의 성형압에서는 10.360 g/cm^{3}을 나타냈다. 이는 성형압이 일정한 수준 이상이 될 경우에는 크랙 등의 결함 발생 빈도가 증가하는 경향 때문에 기하학적 밀도가 감소되는 것으로 판단된다. 따라서 결함발생을 억제하기 위해서는 155 MPa 이하의 성형압을 유지할 필요가 있는 것으로 분석된다. 또한, 밀링후에 윤활제를 0.2 wt% 첨가하고 조립화 공정 후에 추가로 0.2 wt% 첨가한 시험공정의 경우 소결 밀도 특성이 비교적 우수한 것으로 나타났으며 표면 결함 특성도 우수한 것으로 분석되었다. 이는 윤활제의 분포가 고르게 되어 성형 및 소결 특성을 향상시켜 우수한 특성의 소결체가 제조된 것으로 분석되며 이 공정의 적용에 따른 부작용은 나타나지 않았다. 건식 연삭공정에서는 0.8μm 이하의 표면조도를 가진 핵연료 제조 조건을 확립하였다.

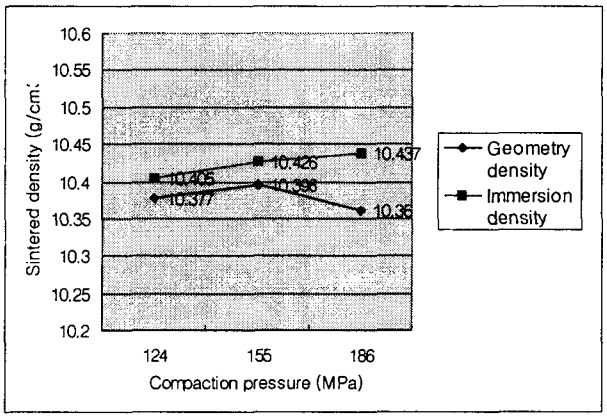

Fig. 1. Sintered densities of DUPIC pellets

4. 결 론

- 각 연료봉으로부터 추출된 소결체를 산화공정으로 분말화한 후에 혼합하여 균일한 분말 로트를 생산하였다.
- OREOX 공정을 통해 경수로 사용후핵연료를 분말처리하여 소결성을 향상시켜 조사시험용 DUPIC 핵연료 소결체를 제조할 수 있음을 입증하였다.
- 10.37 ~ 10.45 g/cm^3(이론밀도의 95.91 ~ 96.65 %)의 소결밀도를 얻었다.
- 실험결과를 바탕으로 조사시험용 DUPIC 핵연료 소결체의 사양을 만족시킬 수 있는 DUPIC 핵연료 제조 공정을 확립하였다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

[1] 양명승 등, DUPIC 핵연료제조 및 공정기술개발, 한국원자력연구소, KAERI/RR-2022/99, 2000. 5
[2] 김웅기 등, DFDF에서의 DUPIC 핵연료 소결체 제조 특성, 한국원자력연구소, KAERI/TR-2005/2002, 2002. 1