

건식 공정 핵연료 소결체 제조를 위한 1 주기 - OREOX 공정 연구

A Study on 1 cycle-OREOX Process for Fabrication of Dry Recycling Nuclear Fuel Pellets

김웅기*, 이도연, 정정환, 이재원, 박근일, 김수성, 이정원
한국원자력연구소 건식재가공핵연료기술개발팀

1. 서론

경수로 사용후핵연료를 중수로 핵연료로 재활용하기 위해 건식 공정으로 재가공된 핵연료를 건식 재가공 핵연료라 하며 건식 재가공 기술을 적용할 경우 핵확산 저항성을 확보하면서 천연우라늄 사용량 및 사용후핵연료 처분량을 감소시킬 수 있다[1].

건식 재가공 핵연료 제조기술을 개발하기 위해 2000년 4월부터 핫셀에서 건식 재가공 핵연료를 제조하였으며 경수로 사용후핵연료를 탈피복 공정과 산화/환원 공정인 OREOX 공정을 거쳐 핵연료 원료 분말로 건식 재가공할 수 있는 기술을 확립한 바 있다[2-4].

건식 재가공 핵연료 소결체를 제조하기 위한 분말처리공정에서 기존에는 산화와 환원이 3회 반복되는 OREOX 공정이 수행된다. OREOX 공정은 사용후핵연료 소결체를 고온에서 산화와 환원 과정으로 처리하여 소결이 가능한 분말로 재가공하는 공정으로 건식재가공핵연료 제조공정중 핵심 공정이다. 산화 공정에서 UO_2 가 U_3O_8 으로 변하며 상변태에 의해 약 32%의 부피팽창이 일어나면서 분말화가 이루어지며, 환원 공정에서 U_3O_8 이 UO_2 로 환원되면서 수축에 따른 압축 응력으로 분말화가 진행된다. 산화와 환원을 반복하면 분말이 미세해지고 비표면적이 증가하여 소결성이 증가되지만 3회 OREOX 공정의 경우 37 시간 이상 많은 시간이 소요된다[2-4].

분말제조공정을 효율적으로 개선하기 위해 산화와 환원이 1회만 수행되는 OREOX 공정이 연구되고 있으며, 모의 사용후핵연료를 사용하여 1회 OREOX 공정으로 이론 밀도의 95% 이상되는 소결체를 제조한 바 있다[5]. 이를 바탕으로 본 연구에서는 핫셀에서 경수로 사용후핵연료를 사용하여 1회 OREOX 공정을 적용하여 성형압 등의 제조공정 조건을 변화시키면서 건식 재가공 핵연료 소결체를 제조하고 특성을 분석하였다. 공정조건중 OREOX 공정에서는 500°C에서 2~3 시간 산화, 700°C에서 5~7 시간 환원시키고, 성형압은 124 ~ 186 MPa 범위가 이용되었다. 1800°C의 소결온도에서 10시간 소결하여 소결체를 제조하였으며 소결밀도를 향상시키기 위하여 1850°C에서 7시간 재소결하였다.

2. 실험

2.1 재료

건식 재가공 핵연료 제조를 위해 1986년 10월에 고리발전소에서 방출된 경수로 사용후핵연료 G23집합체의 C13A 연료봉에서 추출된 핵연료를 사용하였다. 사용된 핵연료의 평균 연소도는 27,000 MWd/tU이다.

2.2 분말 처리 공정

원료분말을 산화온도 500 °C에서 2~3 시간, 환원온도 700 °C에서 5~7 시간의 OREOX 공정을 1회 수행하여 건식 재가공 핵연료 분말을 제조하였다. OREOX 공정을 거친 분말에 대해 450rpm 및 600 rpm의 회전속도로 각각 10 분간 attrition 밀링을 수행하였다. 밀링 분말의 성형성을 향상시키기 위하여 0.4 wt%의 Zn stearate를 혼합하고 유동성 및 충전율을 높이기 위하여 62 MPa로 예비압분한 후에 조립화(mesh 18)시켜 분말을 제조하였다.

2.3 소결체 제조 공정

공정조건중 성형압은 124 ~ 186 MPa 범위가 이용되었다. 탈왁스 처리한 성형체를 수소의 환원성 분위기(Ar-4%H₂)하 1800°C에서 10시간 소결하여 소결체를 제조하였으며 소결밀도를 향상시키기 위하여 1850°C에서 7시간 재소결하였다. 제조된 소결체를 무심연마기에서 건식연마하여 소결체 직경 및 표면거칠기를 조정하였다.

3. 결과 및 검토

분말 밀도 측정 결과, OREOX 공정 후 겉보기 밀도는 2.00 g/cm³, 탭밀도는 3.11 g/cm³를 나타냈고 밀링 후에 겉보기 밀도는 2.40 g/cm³, 탭밀도는 3.89 g/cm³를 나타냈다. 3회 OREOX 공정으로 처리된 분말의 경우에는 OREOX 공정 후 겉보기 밀도는 0.75 g/cm³, 탭밀도는 1.15 g/cm³를 나타냈고 밀링 후에 겉보기 밀도는 2.28 g/cm³, 탭밀도는 3.45 g/cm³를 나타냈다. 1회 OREOX 공정으로 처리된 분말의 경우 3회 OREOX 공정으로 처리된 분말에 비해 분말화가 덜 진행되어 OREOX 공정 직후에는 3 배 정도의 높은 분말밀도를 나타냈지만 밀링공정 후에는 10 % 큰 값을 나타냈을 뿐이다. 이는 밀링 공정으로 미분쇄 효과에 의해 분말 특성을 개선시켰음을 보여준다.

예비압분체의 특성을 분석하기 위하여 압분체의 기하학적 밀도를 측정하였다. 측정결과 예비압분체의 밀도는 6.20 g/cm³를 나타냈다. 3회 OREOX 처리된 분말로 제조된 예비압분체는 6.00 ~ 6.10 g/cm³ 범위를 나타낸 바 있다.

최종 성형 압력 124 MPa, 155 MPa, 186 MPa로 성형된 성형체의 기하학적 밀도는 각각 6.66 g/cm³, 6.77 g/cm³, 6.82 g/cm³를 나타냈다. 3회 OREOX 처리된 분말로 제조된 성형체는 6.52 g/cm³ 를 나타낸 바 있다. 1회 OREOX 처리된 분말의 경우 분말밀도 및 예비압분체와 마찬가지로 성형체의 밀도가 3회 OREOX 처리된 분말로 제조된 성형체의 밀도보다 다소 큰 값을 나타냈다.

그림 1은 성형압의 증가에 따른 소결체의 밀도 변화를 보여준다. 1800℃에서 10시간 소결하여 제조된 소결체는 성형압의 증가에 따라 10.15 ~ 10.22 g/cm³(이론밀도의 93.8 ~ 94.5 %) 범위의 소결밀도를 나타냈다. 소결밀도를 향상시키기 위하여 소결온도를 1850℃로 증가시키고 7시간 재소결하였다. 재소결한 소결체는 10.27 ~ 10.33 g/cm³(이론밀도의 94.9 ~ 95.5 %)의 향상된 소결밀도를 나타냈다. 3회 OREOX 처리된 분말로 제조된 소결체는 10.28 ~ 10.38 g/cm³(이론밀도의 94.9 ~ 95.5 %) 범위의 소결밀도를 나타낸 바 있다[6]. 1회 OREOX 처리된 분말의 경우 3회 OREOX 처리된 분말보다 분말 크기가 크고 비표면적이 작기 때문에 소결성이 낮아 소결밀도가 작은 값을 나타냈지만 고온에서의 재소결공정으로 3회 OREOX 처리된 분말로 제조된 소결체의 소결밀도에 근접한 값을 얻을 수 있었다.

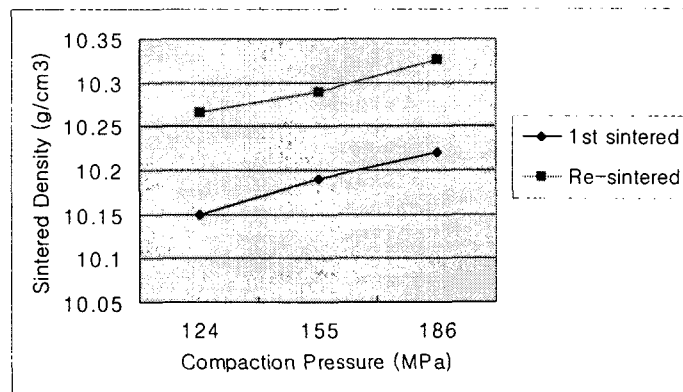


Fig. 1. Sintered density of dry recycling fuel pellets

4. 결론

평균 연소도 27,000 MWd/tU의 경수로 사용후핵연료를 사용하여 핫셀에서 산화와 환원이 1회만 수행되는 OREOX 공정을 적용하여 건식 재가공 핵연료 소결체 제조 실험을 수행하였다. 실험결과 1800℃의 소결온도에서 10시간 소결하여 10.15 ~ 10.22 g/cm³의 소결밀도를 가진 소결체를 제조하였으며 1850℃에서 7시간 재소결함으로써 10.27 ~ 10.33 g/cm³의 향상된 소결밀도를 가진 소결체를 제조하였다. 1회 OREOX 공정으로 처리된 분말의 경우 3회 OREOX 공정으로 처리된 분말보다 분말 크기가 크고 비표면적이 작기 때문에 소결성이 낮아 소결밀도가 작은 값을 나타냈지만 밀링공정과 고온에서의 재소결 공정으로 3회 OREOX 공정으로 제조된 소결체의 소결밀도에 근접한 값을 얻을 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

- [1] 양명승, 박현수, The DUPIC Fuel Development Program in Korea, Proceedings of DUPIC Fuel Workshop '97, p.1, 1997
- [2] 양명승 등, DUPIC 핵연료제조 및 품질관리기술 개발, 한국원자력연구소, KAERI/RR-1744/96, 1997. 9
- [3] 양명승 등, DUPIC 핵연료제조 및 공정기술 연구, 한국원자력연구소, KAERI/TR-1336/99, 1999. 6
- [4] 김용기 등, DFDF에서의 DUPIC 핵연료 소결체 제조 특성, 한국원자력연구소, KAERI/TR-2005/2002, 2002. 1
- [5] 이재원 등, 모의 사용후핵연료를 이용한 건식재가공핵연료 분말제조 공정개선 연구, 한국원자력학회 2003 춘계학술발표회 논문집, 2003. 5
- [6] 김용기 등, 중수로 원전용 건식재가공핵연료 소결체 제조, 한국자원리사이클링학회 2003 춘계학술발표회 논문집, pp.136-139, 2003. 5