

분말처리에 따른 모의핵연료의 특성

Study on the Characteristics of the DUPIC Fuel with Powder Treatments

한국원자력연구소 문제선, 강권호*, 문홍수, 송기찬, 양명승

1. 서론

최근 핵연료 개발에 관한 연구는 Dirty Fuel Clean Energy 개념의 새로운 핵연료를 개발에 관심이 집중되고 있다. 특히 사용후핵연료를 OREOX(Oxidation and reduction of Oxide Fuel) 공정을 거쳐 재 소결한 DUPIC(Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors) 핵연료는 단순 재가공핵연료로서 사용후핵연료에 존재하는 핵분열생성물을 분리하지 않으므로 핵확산저항성을 갖고있는 핵연료라 할 수 있다. 이러한 DUPIC의 개발을 위해서는 물성확보(열전도, 열팽창율, 비열, 크립, 경도)와 노내거동 및 핵연료로서의 성능을 평가하기 위한 자료를 확보하는 것은 매우 중요하다. 그러나 실험실 규모에서 사용후핵연료로를 직접 이용하여 성능평가를 수행하기에는 방사선차폐 등 많은 어려움이 따른다. 따라서 사용후핵연료를 모사하는 모의 핵연료를 제조하여 핵연료의 물성 측정 및 노내 조사시험 등에 이용한다.

본 연구에서는 방사선으로부터 비교적 안전한 천연 이산화우라늄에 핵분열시 발생하는 여러 생성물을 첨가하여 연소도에 따른 모의 DUPIC 핵연료를 제조하였다. 일반적으로 UO_2 소결체의 제조방법은 기존에 많은 연구를 통하여 확립되었으나, 모의 DUPIC 핵연료 제조방법은 초기 연구 개발 단계이다. DUPIC 핵연료는 주성분으로서 UO_2 에 불순물로 첨가되는 고용체 및 석출물로 인해 건전한 소결체의 제조에 따르므로 제조 방법을 변화시켜 실험을 행하였다.

2. 실험방법

2.1 재료

모의 DUPIC 핵연료 제조를 위하여 천연 이산화 우라늄(UO_2)은 ADU(ammonium diuranate) 공정으로 제조된 분말을 이용하였다. 가압 경수로에서 연소된 사용후 핵연료를 모사하기 위하여 첨가될 핵분열 생성물은 ORIGEN-2 코드를 이용하여 계산하였으며, 휘발성 물질은 배제하고 함량이 높은 15개 원소를 선정하여 첨가하였다.

2.2 분말처리 및 소결

UO_2 와 핵분열 생성물이 균일하게 혼합되게 하고 소결성을 양호하게 하기위하여 혼합 분말을 Turbular miller에서 1시간씩 4회 반복 분쇄하였다. 매 분쇄 후 150번 채를 이용하여 채질을 한 후 반복 분쇄하였다. 성형은 자동 일축 가압 성형기를 이용하였으며, 성형압력은 1. 2. 3 ton/cm² 으로 변화시키면서 수행하였다. 성형시 유지시간은 약 20초로 하였다. 분말간 또는 분말과 성형다이 벽면과의 마찰로 인한 스트레스를 줄이기 위해 0.3 wt% Zinc stearate 윤활제를 사용하였다. 또한 소결밀도를 조절하기 위한 기공형성제로 AZB(azodicabon amide)를 이용하였다. 소결은 1800°C에서 6시간 동안 100 % 수소분위기의 Mo 히터로를 이용하였다. 승온 속도는 분당 4 °C이며, 윤활제로 사용한 Zinc stearate를 날려 보내기 위해 800°C에서 1 시간 유지하였다. 또한 소결에 따른 부피수축으로 인한 스트레스를 해소하기위해 1500, 1600, 1700 °C에서 1시간씩 유지시켰다. 소결 후 냉각속도는 분당 5°C로 하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 1은 UO_2 와 모의 핵연료의 조직사진을 나타낸 것이다. 비슷한 구조를 보이고 있으며 결정립은 약 $4.6 \mu\text{m}$ 로 나타났다. 성형압이 1 ton/cm^2 에서 3 ton/cm^2 으로 증가함에 따라 상대 소결밀도는 96.4에서 97.5 %로 증가하였으며 기공 형성제를 포함한 경우 93.7에서 95.1 %로 감소하였다. 56 kWd/kgU에 해당하는 모의 핵연료의 소결밀도가 112 kWd/kgU에 해당하는 모의 핵연료의 소결밀도보다 크게 나타났다. 이는 불순물이 핵연료의 소결과 고밀화에 영향을 미치기 때문으로 생각된다. EPMA 결과 결정립 계 주위에 Mo, Ru, Pd, Rh 등의 금속 석출물이 형성되었으며, 기지내에는 산화 석출물로서 Zr과 Ba가 주를 이루는 것으로 나타났다.

4. 결론

본 실험을 통해서 열물성 측정용 또는 조사시험용 모의 핵연료의 제조 공정을 확립하였으며 핵분열생성물의 형태를 파악하였다. 56 kWd/kgU에 해당하는 모의 핵연료의 제조를 위한 최적 조건은 약 1 %의 기공 형성제 AZB(azodicarbon amide)를 첨가하여 성형압 3 ton/cm^2 으로 성형하여 1800°C 에서 6시간 소결하는 것으로 이때 결정립은 약 $4.6 \mu\text{m}$, 상대 소결밀도는 95.1 %로 나타났다.

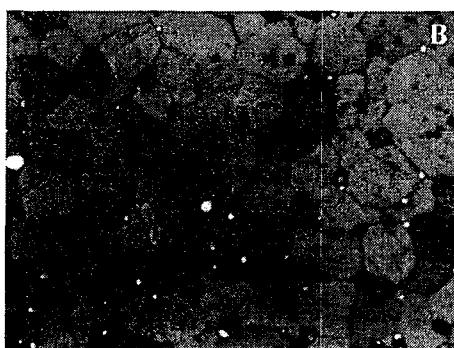


Fig. 1. SEM image of a polished and etched surface of simulated DUPIC fuel ($\times 1000$) showing equiaxed matrix grains and precipitates

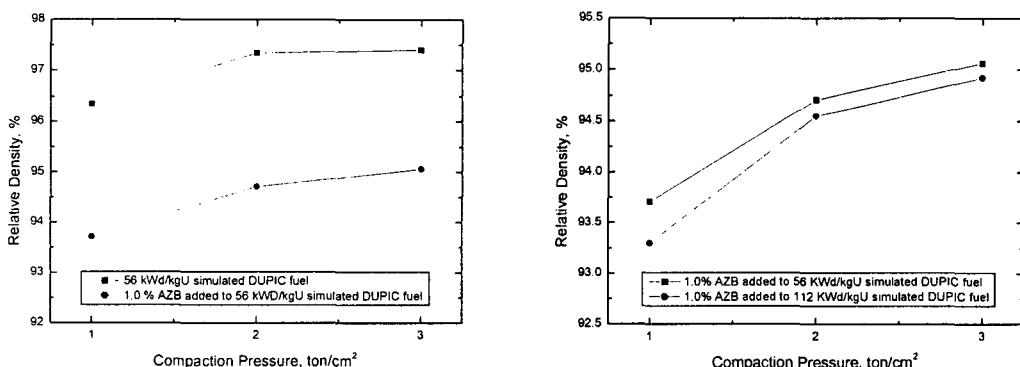


Fig. 2. Relative densities of simulated spent fuel with compaction pressure