사용후핵연료 열처리 조건별 제조된 분말 특성 분석

이재원, 박근일, 이도연, 조광훈, 박장진, 이정원
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
njwlee@kaeri.re.kr

1. 서 론

사용후핵연료 재활용을 위한 건식 재가공 공정에서 제조된 분말 특성은 건식 재가공 핵연료 원격 제조 특성뿐만 아니라 파이로 전처리 공정 특성에 영향을 미치게 된다. 따라서 사용후핵연료 열처리 조건별 분말화 특성 평가는 공정 조건 설정을 위하여 중요한 기반 자료가 된다. 특히 사용후핵연료 연소도가 증가할수록 핵분열생성물의 양 즉 불순물의 양은 증가하므로 이에 따라 연소도가 증가할수록 산화속도가 더 느려지는 것으로 알려져 있다[1,2]. 지금까지 알려진 연소도 변화에 따른 산화 메커니즘 특성을 보면, UO_{2+x} 산화물과 핵분열생성물이 산화과정에서 안정한 형태 즉 $(U,FP)_4O_9$ 상을 이루어 분말화가 상대적으로 늦게 일어나게 되며 높은 온도에서도 이러한 상이 존재함으로서 일부 핵연료는 U_3O_8 상으로 분말화가 일어나지 않게 되는 것으로 알려져 있다.

본 연구에서는 모의 사용후핵연료(Simulated spent fuel)를 이용하여 열처리 조건 변화에 따른 분말화 특성을 평가하였으며, 실제 사용후핵연료를 이용하여 연소도 변화에 따른 제조된 분말 특성 자료를 제시하였다.

2. 실 험

2.1 SIMFUEL 이용 분말화 실험

UO_2 소결체, 연소도 범위 30,000 MWd/tU~60,000 MWd/tU의 SIMFUEL 소결체를 제조하였으며, UO_2 및 SIMFUEL의 밀도는 이론밀도의 95%이상이였으며, UO_2, 연소도 30,000과 및 60,000 MWd/tU SIMFUEL의 결정립 크기 각각 8, 7, 5 μm인 것을 사용하였다. OREOX 분말은 산화(500℃)-환원(700℃)(OREOX) 과정을 3회 반복하여 제조하였다. 고온 산화분말은 500℃에서 산화분말을 제조한 후에 1400℃에서 산화 열처리를 하여 제조하였다.

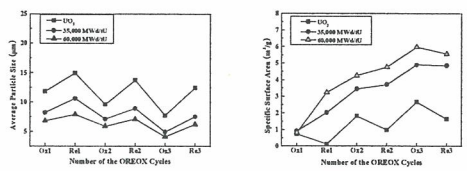
2.2 사용후핵연료 이용 분말화 실험

연소도 범위 27,000 MWd/tU~65,000 MWd/tU의 PWR 사용후핵연료를 이용하여 DFDF(DUPIC Fuel Development Facility) 핫셀에서 분말 제조 실험을 수행하였다. 탈피복후 회수된 fragment 형태 사용후핵연료를 이용하여 먼저 500℃에서 산화 실험을 수행하고, 산화분말을 산화(450℃)-환원(700℃)(OREOX) 과정을 3회 반복하여 OREOX 분말을 제조하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 SIMFUEL 이용 제조 분말 특성

그림 1은 산화환원을 반복함에 따라서 생성된 OREOX 분말의 입자크기 및 비표면적의 변화를 나타낸 것이다. OREOX 분말의 입자크기는 UO_2 및 SIMFUEL 소결체의 결정립 크기에 의해 결정되었다. 비표면적은 연소도가 증가함에 따라서 증가하는데 이는 고용성분에 의해 영향을 받는 것으로 여겨진다.



(a) Average particle size (b) Specific surface area

Fig. 1. Characteristics of SIMFUEL and UO_2 powders produced by the number of OREOX cycles

3.2 고온 열처리 분말 특성

고온 열처리에 의해서 산화분말은 응집체 형태를 변형되었으나 Sieving을 함에 따라서 미세입자간의 결합이 되지 않은 부분이 떨어져 나가 분말형태로 변하였다. 500℃에서 생성된 U_3O_8, 연소도 30,000 및 60,000 MWd/tU U_3O_8 분말의 탭밀도는 각각 2.51, 2.69, 2.65 g/cm^{3}으로 SIMFUEL 분말이 입자간의 접촉이 높음을 알 수 있다. 따라서 고온열처리에 의해 SIMFUEL 분말에서는 큰 입자들이 많이 생성되었다(그림 2).

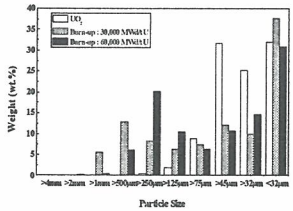


Fig. 2. Particle size distribution of powder produced by high temperature oxidation

3.3 사용후핵연료 이용 연소도별 분말화 특성

그림 3은 500℃에서 10시간 산화 처리 후 얻은 무게이득 변화를 사용후핵연료 연소도 변화에 따라 도식한 결과이다. 그림에서 보는 바와 같이, 연소도 58,000 MWd/tU 까지의 산화 무게 이득 값은 이론 무게이득 값인 3.95 wt%과 비교하여 약간 높게 나타났다. 그러나 연소도 60,000 MWd/tU 이상일 경우 무게 이득이 크게 감소하여 완전 산화가 잘 일어나지 않음을 알 수 있다.

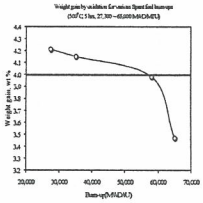
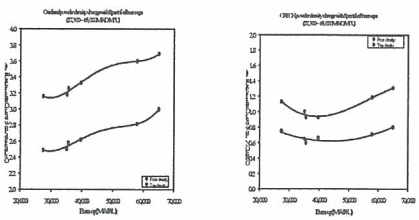


Fig. 3. Variation of weight gain with spent fuel burnups by oxidation at 500℃

아울러 사용후핵연료 연소도별 제조된 산화 분말 및 OREOX 분말의 탭 밀도 변화를 그림 4에 각각 도식하였다.



(a) Oxidized powder (b) OREOX powder

Fig. 4. Variation of tap density with spent fuel burnups for oxidized and OREOXed powders

연소도가 40,000 MWd/tU 이하인 경우에는 대부분 미세한 산화분말 형상을 보여주고 있지만, 고연소도 핵연료의 경우 미세 산화 분말내에서 입자크기가 약간 큰 산화분말을 관찰할 수 있었다.

3.4 사용후핵연료 이용 연소도별 분말화 특성

그림 5는 연소도 65,000 MWd/tU(K23-M03) 과 39,600 MWd/tU(G23-L2A) 사용후핵연료 산화 분말 및 OREOX 분말의 입자 분표 비교 결과이다. 전체적으로 산화 분말은 대부분 40 ㎛ 이하가 대부분인 반면, OREOX 분말 입자는 70㎛가 상당부분 차지하고 있는 것으로 나타났다.

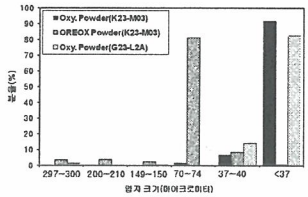


Fig. 5. Particle size distribution of oxidized and OREOXed powders with fuel burnup

4. 결 론

본 연구는 사용후핵연료 재활용을 위한 건식 재가공 공정에서 필수적인 탈피복후 사용후핵연료 분말 제조 특성을 SIMFUEL 및 실제 사용후핵연료를 이용하여 평가하였다.

SIMFUEL을 이용하여 제조된 OREOX 분말의 입자크기는 소결체의 UO_2 결정립 크기에 따라서 결정되었으며, 고온열처리 분말의 입자크기는 입자형상에 의해서 영향을 받음을 알 수 있었다.

실제 사용후핵연료를 이용하여 연소도 변화에 따른 500℃ 산화 및 OREOX 열처리 조건에 따른 분말화 특성을 평가한 결과, 산화후 무게이득은 60,000 MWd/tU 이상에서 크게 감소하였으며, 산화 및 OREOX 분말의 탭 밀도는 연소도 증가에 따라 높은 값을 나타내어 미세 분말화가 국부적으로 어렵다는 것을 알 수 있었다.

5. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국연구재단의 원자력 연구개발사업 지원으로 수행되었읍니다.

6. 참고문헌

[1] J. Cobos, D. Papaioannou, J. Spino and M. Coquerelle, J. of Alloys and Compounds, 271-273, pp. 610-615 (1998).

[2] J.Y. Colle, J.-P. Hiernaut, D. Papaioannou and C. Ronchi, A. Sasahara, J. of Nuclear Materials, 348, pp. 229-242 (2006).