

DUPIC 핵연료 소결체 제조를 위한 공정조건 최적화 연구
(A Study on the Optimal Process Parameters
for the Fabrication of DUPIC Fuel Pellets)

한국원자력연구소 이정원*, 김봉구, 김종호, 이재원, 김용기, 박근일

1. 서론

경수로에서 사용된 핵연료 소결체를 직접 산화 및 환원처리를 반복하여 분말화한 후 다시 중수로 핵연료 소결체로 만들고자 하는 경.중수로 연계핵연료(DUPIC; Direct Use of Spent PWR fuel in CANDU reactors) 제조기술 개발연구가 진행 중에 있다[1,2]. 그러나 사용후 핵연료는 고방사성의 핵물질이라 제조공정 기술개발을 위해 이를 직접 실험에 이용하는 데는 어려움이 있다. 따라서 제조공정 조건 최적화 수립을 위해 먼저 천연이산화우라늄 분말을 이용해 기초적인 실험을 수행하고, 이어 사용후핵연료를 모사한 모사핵연료(SIMFUEL; Simulated Fuel)를 이용해 최적의 공정조건을 수립한 후, 이를 실제 사용후핵연료를 이용한 DUPIC 핵연료 제조공정에 적용하였다.

본 연구는 이러한 DUPIC 핵연료 제조공정 조건 최적화를 위해 수행된 일련의 기초실험과 조건 최적화실험 결과들에 관한 것이다.

2. 실험 방법

기초 실험을 위해 천연우라늄 AUC(Ammonium Uranyl Carbonate) 분말과 ADU(Ammonium Diurate) 분말이 사용되었으며, 공정조건 최적화 실험에는 방출연소도 35,000 MWD/MTU인 사용후핵연료 조성을 모사한 SIMFUEL이 사용되었다. UO_2 소결체를 분위기 조절 가능한 furnace에 넣고 산화/환원처리하여 분말을 만들고, 이를 약 3 ton/cm^3 의 압력으로 압분한 후, 1700°C 환원분위기에서 약 4시간 소결하여 소결성을 조사하였다. 분말의 특성 분석을 위해 형상은 SEM으로 관찰하였고, 비표면적은 BET 방법으로, 분말 입자크기는 sub sieve sizer로 측정하였다. 압분밀도는 압분체의 무게 및 칫수를 측정하여 계산하였고, 소결밀도는 immersion 방법으로 측정하였으며, 미세구조는 광학현미경으로 관찰하였다.

3. 결과 및 고찰

UO_2 소결체를 분말화하기 위한 산화/환원 공정조건으로 공기중 450°C , 환원분위기하 700°C 가 선정되었다. 400°C 에서 산화된 분말의 비표면적은 산화시간 30 분까지는 증가하다가 그 이후는 감소하였으며, 400°C 에서 시작된 산화는 중간상 형성에 따른 부피축소로 결정립계에 균열이 형성되어 부분적인 분리가 발생하는 것이 관찰되었다. 산화반응이 진행되는 동안 결정립계 균열은 소결체 내부로 진행되었으며, 이후 U_3O_8 상 형성이 분리를 촉진시키는 것으로 사료된다. 그리고 산화/환원의 반복에 따라서 분말의 표면은 거칠어지며, 비표면적은 증가하고 입자크기는 감소하였다. 따라서 산화/환원의 반복으로 소결성은 향상되었다. Milling에 의해서 분말의 비표면적은 증가하였으며, 소결밀도는 산화/환원 반복횟수가 증가할수록 높게 나타나는 경향을 보였다.

SIMFUEL을 이용한 조건 최적화 실험에서는 산화/환원 반복횟수 및 분쇄 시간에 따른 입자크기 및 비표면적을 측정하여 Fig. 1에 나타내었다. 입자크기는 15 분 이상 milling할 경우 모두 $1 \mu\text{m}$ 이하로 매우 미세하였으며, 비표면적은 milling시간보다 산화/환원 반복횟수에 따라 더 크게 영향을 받으며, milling시간에 따라서는 거의 선형적으로 증가하였다. 이러한 조건으로 소결체를 제조한 결과, 소결밀도 약 10.5 g/cm^3 의 고밀도를 얻을 수 있었다. 그리고

소결체의 결정립 크기도 모두 6 μm 이상이었다.

이상의 실험에서 얻은 공정조건을 실제 사용후핵연료를 이용한 DUPIC 핵연료 소결체 제조공정에 적용하여 시험 제조한 결과, 핵연료 기준사양을 잘 만족하는 건전한 DUPIC 핵연료 소결체를 제조할 수 있었다.

4. 결론

1. 소결체를 분말화하기 위한 산화/환원 공정조건으로 공기중 450 $^{\circ}\text{C}$, 환원분위기하 700 $^{\circ}\text{C}$ 가 최적이었다.
2. 산화/환원처리된 분말은 milling 공정을 통해 소결성을 더욱 향상시킬 수 있어 DUPIC 핵연료 소결체 제조를 위해서는 milling 공정이 필수적이다.
3. 천연 UO_2 및 SIMFUEL 소결체를 사용해 얻은 실험결과는 고방사성의 사용후핵연료를 이용한 실제 실험결과와 잘 일치하며, 이를 통해 DUPIC 핵연료 소결체 제조 공정조건을 최적화할 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

1. 양명승 외, 경.중수로 연계핵연료 주기기술개발, 한국원자력연구소, KAERI/RR 1744/96 (1997)
2. K.K. Bae, B.G. Kim, Y.W. Lee, M.S. Yang and H.S. Park, "Oxidation behavior of unirradiated UO_2 pellets" J. Nucl. Mater. 209 (1994) 274

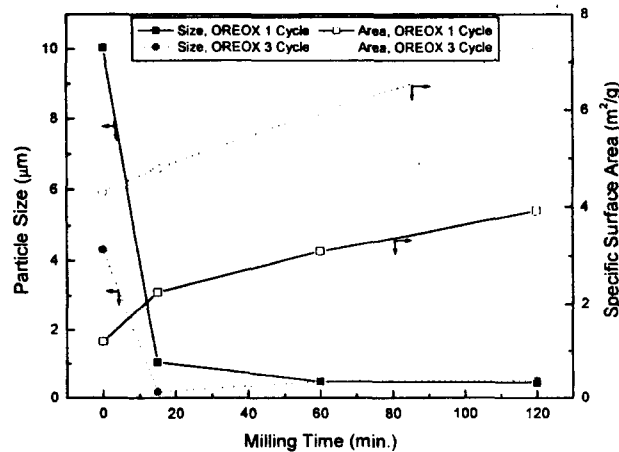


Fig. 1 The variation of mean particle size and specific surface area with the milling time