

## 사용후핵연료 연소도 혼합에 따른 소결체 제조 특성 평가

박근일, 이도연, 이영순, 조광훈, 문제선, 이정원  
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045  
[ngipark@kaeri.re.kr](mailto:ngipark@kaeri.re.kr)

### 1. 서론

전 세계적으로 최근에 고연소도 PWR 사용후핵연료 발생량 정도가 계속적으로 증가하는 추세이며, 따라서 사용후핵연료 재활용을 위한 대용량 건식 재가공 공정에서는 저/고연소도 사용후핵연료를 별도 구분하지 않고 연소도가 혼합된 상태로 재가공할 가능성이 높다. 그러므로 연소도 혼합에 따른 사용후핵연료 건식 재가공 원격제조 특성 평가를 통한 핵주기 기술개발 관련 기반 자료를 사전에 구축할 필요가 있다. 사용후핵연료 연소도 혼합시 소결 특성에 영향을 미치는 기본 인자는 크게 치밀화 정도와 불순물 함량으로 여겨진다. 불순물 함량은 연소도에 의해 결정되며 고용형 불순물과 석출형 불순물이 있고, 일반적으로 불순물은 소결을 방해하여 입도를 작게 하고 소결 밀도를 낮게 하는 경향이 있으며, 특히 석출형 불순물(Mo-Tc-Ru 계 금속 석출물)은 입계에 석출되어 소결 시 입계의 이동을 방해한다.

본 연구에서는 DFDF(DUPIC Fuel Development Facility) 핫셀에 저장중인 다양한 연소도의 실제 사용후핵연료를 이용하여 기존에 설정한 건식 산화물전환체 원격제조 자격화 공정의 연소도 혼합에 따른 소결체 제조 특성을 평가하였다.

### 2. 연소도 혼합비율에 따른 압분 특성

#### 가. 저/고연소도 사용후핵연료 혼합비율

저/고연소도 사용후핵연료 혼합 비율은 Cm 함량이 각 베퀴별로 동일하게 함유되도록 하였으며, 여기서 Cm 함량은 45,000 MWd/tU 연소도(4% 농축도) 사용후핵연료내 양을 기준으로 하였다. 표 1은 총 6 베퀴 연소도 혼합비율 및 혼합시 핵연료 이론밀도, 핵분열생성물(FP) 분율, Cs 분율을 정리한 것으로, 크게 Cs 등이 포함되지 않은 소결체와 재가공하지 않은 사용후핵연료 fragment로 구분하여 혼합제조 특성을 평가하였다..

#### 나. 연소도 혼합비에 따른 압분 특성

표 1에 제시된 사용후핵연료 혼합비율을 기준으로, 표 2의 건식 재가공 핵연료 원격 제조를 위한 자격화 공정(Qualified process) 순서 및 실험 조건을 동일하게 적용하여 산화/OREOX 분말 및 최종 압분체 약 120개를 제조하였다. 혼합 연소도에 따른 베퀴별 최종 압분체 밀도값 변화를 분석한 결과, 소결체를 재산화하여 제조한 압분체 밀도는 6.0 ~ 6.3 g/cm<sup>3</sup> 범위로서 Cs이 함유된 사용후핵연료 fragment를 이용하여 제조한 압분체 밀도 범위 6.3 ~ 6.5 g/cm<sup>3</sup> 보다 더 낮게 나타났다. 이는 소결체를 재산화후 제조한 OREOX 분말의 성형성이 초기 사용후핵연료 분말 성형성보다 떨어진다는 것을 의미한다. 아울러 연소도 혼합시 서로 상이한 특성의 분말의 혼합에 기인하여 분말의 성형성이 단일 연소도에 비하여 다소 떨어졌다.

### 3. 연소도 혼합비율에 따른 소결 특성

베퀴별로 제조한 최종 압분체를 이용하여 기존 자격화 소결 공정 조건(표 2 : 소결 1)인 1,800℃에서 10시간 소결 실험을 수행하였다. 혼합 연소도 사용후핵연료를 이용하여 제조한 소결체 밀도는 9.8 ~ 9.9 g/cm<sup>3</sup> 범위로 혼합 연소도 이론 밀도의 약 93% 정도이었다. 이는 계산 밀도 값을 기준으로 구한 % T.D와 비교하면 약 2.5 ~ 3% 정도의 낮은 값으로, 재가공 소결체 분말 및 사용후핵연료 fragment 이용한 경우 모두 비슷한 경향을 나타내었다.

그러나 표 2의 소결 2 공정(1,300℃, 3시간 후→ 1,800℃, 10시간)을 이용하여 소결 공정 조건 변화에 따른 제조 특성을 평가한 결과, 대부분의 베퀴내 소결체 밀도가 표 3에 제시한 바와 같이, 95% T.D.(Theoretical Density) 이상을 보여 주었다. 단 소결체 재산화한 분말을 이용한 2 베퀴(G23-B5+K23-B16, K23-M03)의 경우 95% T.D.에 0.5% 정도 낮게 나타나 분말의 소결성이 재순환에 의하여 약간 떨어졌음을 확인하였지만, 소결 1 공정 보다 약 2% T.D. 만큼 증가하였다. 이상과 같이 사용후핵연료 연소도가 다른 분말을 혼합하여 건식 재가공 산화물 소결체를 제조할 경우에도 개선된 소결

공정(1,300℃, 3시간 후→ 1,800℃, 10시간)을 이용시 95% T.D. 품질 기준을 만족하는 소결체를 제조할 수 있음을 확인하였다.

사 사

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

표 1. 저/고연소도 사용후핵연료 혼합 비율

Series	배치	연소도 (GWd/tU)	형태	무게 (g)	무게 비율	이론 밀도	혼합 이론밀도	FP분율 (%)	혼합FP 분율	Cs 분율	혼합Cs 분율
1X	G23-K10A+	35	Fragment	151.4	0.757	10.739	10.713	3.6	4.18	0.14	0.11
	K23-B16	58	소결체	48.6	0.243	10.630		6.0		0.00	
2X	G23-K10A+	35	Fragment	146.1	0.730	10.739	10.707	3.6	4.25	0.14	0.16
	J502-C16	60	Fragment	53.9	0.270	10.622		6.0		0.22	
3X	G23-K10A+	35	Fragment	171.4	0.857	10.739	10.720	3.6	4.06	0.14	0.15
	K23-M03	65	Fragment	28.6	0.143	10.603		6.8		0.24	
4X	G23-B5+	27.3	소결체	141.5	0.725	10.782	10.740	2.8	3.68	0.00	0.00
	K23-B16	58		54.9	0.275	10.630		6.0		0.00	
5X	G23-B5+	27.3	소결체	139.4	0.697	10.782	10.733	2.8	3.77	0.00	0.07
	J502-C16	60		60.6	0.303	10.622		6.0		0.22	
6X	G23-B5+	27.3	소결체	167.2	0.836	10.782	10.752	2.8	3.46	0.00	0.00
	K23-M03	65		32.8	0.164	10.603		6.8		0.00	

표 2. 사용후핵연료 이용 건식 재가공 산화물전환체(핵연료) 제조 자격화 공정 조건

순서	공정	자격화 시험조건
1	Slitting 공정	- Mechanical slitting
2	산화공정	- 산화조건 : 500 °C, 5시간, 공기, 8 L/min
3	산화·환원공정 (OREOX Process)	- 산화 : 450 °C, 2시간, 공기, 5.5 L/min
		- 환원 : 700 °C, 7시간, 아르곤/4% 수소, 13 L/min
		- Passivation : 80 °C, 4시간, 아르곤/2% 산소, 2 L/min
4	미분쇄공정	- 수평식 ball-milling, milling time : 20분 (10분: 450rpm, 10분:600rpm)
5	혼합(I)공정	- 0.2 wt% zinc stearate 주입, 20분간 혼합
6	예비압분 및 조립화 공정	- 압분압력 : 64 MPa, 조립화후 Sieving :# 18 통과(1 mm)
7	혼합(II)공정	- 0.2 wt% zinc stearate (2차혼합), 20분간 혼합
8	최종압분	- 최종 압분압력 : 120 MPa 일정
9	탈락스공정	- 800 °C, 3시간, 아르곤/4% 수소, 8 L/min
10	소결 공정	- 소결1 : 1,800 °C(10시간) 4% 수소/Ar
		- 소결2 : 1,300 °C(3시간), 1,800 °C(10시간) 4% 수소/Ar

표 3. 사용후핵연료 혼합시 배치별 소결 공정조건 변화에 따른 소결체 밀도 평균값 비교

배치	G23-K10A+ K23-B16	G23-K10A+ J502-C16	G23-K10A+ K23-M03	G23-B5+ K23-B16	G23-B5+ J502-C16	G23-B5+ K23-M03
소결 1 (1,800℃,10시간)	9.86 (93.0%)	9.86 (93.0%)	9.78 (92.1%)	9.83 (92.5%)	9.86 (92.8%)	9.92 (93.2%)
소결 2 (1,300℃,3시간 → 1,800℃, 10시간)	10.19 (95.13%)	10.30 (96.2%)	10.27 (95.8%)	10.00 (94.51%)	10.24 (95.44%)	10.12 (94.63%)