KR0000247

KAERI/TR-1482/2000

모의 DUPIC 핵연료 제조기술개발

Development of the Fabrication Technology of the Simulated DUPIC Fuel

2000. 6.

DUPIC 핵연료 개발팀

한 국 원 자 력 연 구 소

제 출 문

한국원자력연구소장 귀하

본 보고서를 DUPIC 핵연료 조사시험 및 성능평가 분야에서 수행한 DUPIC 핵연료의 열물성연구와 관련하여 "모의 DUPIC 핵연료 제조기술개발"의 기술보고서로 제출합니다.

제 목: 모의 DUPIC 핵연료 제조기술개발

(Development of the Fabrication Technology of the Simulated DUPIC Fuel)

2000년 6월

주저자 : 강권호 (DUPIC핵연료기술개발팀)

공동저자 : 양명승, 배기광, 문제선, 정인하, 송기찬, 박희성, 이철용, 김동주, 민진영, 김형수 (DUPIC핵연료기술개발팀)

요 약 문

DUPIC 핵연료의 물성, 핵분열기체 방출 및 입자성장 등이 일반 핵연료와 다르기 때문에 DUPIC 핵연료의 물성, 노내 거동 및 핵연료로서의 성능을 분석하기 위한 기초자료를 확보하는 것이 중요하다. 그러나 사용후 핵연료를 OREOX 공정을 거쳐 재 소결한 DUPIC 핵연료를 이용하여 열물성등을 직접 측정하는 것은 사용후 핵연료로부터 발생하는 높은 방사선량 때문에 실험실 규모의 연구에는 방사선 차폐등 많은 어려움이 따른다. 따라서 DUPIC 핵연료의 물성을 측정하기 위하여 DUPIC 핵연료를 모사한 모의 DUPIC 핵연료를 제조하여야 한다. 본 보고서에서는 모의 경수로 사용후 핵연료를 이용하여 모의 DUPIC 핵연료를 제조하기 위한 분말처리, OREOX, 성형 및 소결공정에 관하여 기술하였다. 모의 DUPIC 핵연료를 제조하기 위하여 모의 경수로 사용후 핵연료를 3회 OREOX 후 5회의 attrition milling을 거친 분말을 1.3~1.65 ton/cm^2의 압력으로 성형한다. 약 1800℃에서 10시간 소결하여 소결밀도 10.37~10.50 g/cm^3의 소결체를 만들었다.

Abstract

It is important to get basic data to analysis physical properties, behavior in reactor and performance of the DUPIC fuel because physical properties, fission gas release, grain growth and et al. of the DUPIC fuel is different from the commercial UO_2 fuel. But what directly measures physical properties et al. of DUPIC fuel being resinterred simulated spent fuel through OREOX process is very difficult in laboratory owing to its high level radiation. Then fabrication of simulated DUPIC fuel is needed to measure its properties. In this study, processes on powder treatment, OREOX, compaction and sintering to fabricate simulated DUPIC fuel using simulated spent fuel are discribed. To fabricate simulated DUPIC fuel, the powder from 3 times OREOX and 5 times attrition milling simulated spent fuel is compacted with 1.3 ton/cm^2. Pellets are sintered in 100% H_2 atmosphere over 10 h at 1800℃. Sintered densities of pellets are 10.2~10.5 g/cm^3.

목 차

요 약 문 i

Abstract ii

목 차 iii

그림목차 iv

표목차 v

1. 서 론 1

2. 모의핵연료제조연구현황 2

3. 모의 DUPIC 핵연료 제조 8

4. 결 론 43

그림 목차

Fig. 1. Flow chart of manufaturing process of simulated DUPIC fuel 9
Fig. 2. SEM morphologies of the powder after attrition milling 12
Fig. 3. Variation in particle size due to milling times. 13
Fig. 4. Variation of sintering temperature with time 16
Fig. 5. Sintered density due to compaction pressure 17
Fig. 6. Pore structure of pellet mixing Zn stearate and granulating 18
Fig. 7. Pore structure of pellet granulating and no mixing Zn stearate 19
Fig. 8. Pore structure of pellet no granulating and no mixing Zn stearate .. 20
Fig. 9. Variation of green density due to the compaction pressure 23
Fig. 10. Pore and grain morphology of sintered pellet with 3 times milled powder.(1700℃, 10hr) 24
Fig. 11. Pore and grain morphology of sintered pellet with 5 times milled powder.(1700℃, 10hr) 25
Fig. 12. Variation of sintered densities due to compaction pressure 26
Fig. 13. Pore morphology of sintered pellet due to compaction pressure (1750℃, 4hr) 27
Fig. 14. Variation of green density due to compaction pressure 30
Fig. 15. Variation of sintered density due to compaction pressure (1800℃, 10hr) 31
Fig. 16. Microstructiure of simulated spent fuel due to compaction pressure (1800℃, 10hr) 32
Fig. 17. Variation of OREOX temperature V.S. time 33
Fig. 18. Sintered density of simulated spent fuel and simulated DUPIC fuel due to compaction pressure 36
Fig. 19. Crack shapes of simulated spent fuel and simulated DUPIC fuel 37
Fig. 20. Sintered density of simulated DUPIC fuel due to compaction pressure 40
Fig. 21. Microstructure of simulated DUPIC fuel 41

표 목 차

Table 1. Composition of simulated spent fuel (ORIGEN-2, PWR, 235U=3.42%) 5
Table 2. ORIGEN Code calculations and measured composition of 3 and 6 at% burnup SIMFUEL, as sintered. 6
Table 3. ORIGEN code calculations and measured compositions of 3 and 6 at% burnup SIMFUEL,as sintered 7
Table 4. Contents of fission products added to UO2 10
Table 5. Variation in green density due to powder treatment and compaction pressure. 15
Table 6. Dimensions and densities of green pellets 22
Table 7. Dimension and green pellet density due to compaction pressure 29
Table 8. Green density and sintered density of simulated spent fuel and simulated DUPIC fuel due to compaction pressure 35
Table 9. Green density and sintered density of simulated DUPIC fuel due to compaction pressure 39

1. 서론

DUPIC(Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors) 핵연료는 사용후 경수로 핵연료를 직접 재 가공하여 중수로에 다시 사용하고자 하는 자원 재활용 개념의 핵연료이다. 사용후 경수로 핵연료에는 약 1.5%의 핵분열 물질이 잔존하고 있어 천연 우라늄(0.71%)을 연료로 사용하는 중수로에 재사용이 가능하며, 특히 우리 나라는 경수로형 원자로와 중수로형 원자로를 동시에 보유하고 있는 국가로서 이와 같은 핵연료주기의 적용에 적합한 국가이다. 경수로에서 연료로서 수명을 다한 사용후 핵연료를 중수로용으로 재사용 한다면 사용후 핵연료의 처분량 감소는 물론 자원의 재활용이라는 두 가지 목적을 동시에 달성할 수 있다. 이 기술은 플루토늄은 물론 기타 핵물질의 분리를 근본적으로 지양하고 있는 기술이기 때문에, 핵확산 저항성 핵연료에 잘 부합되는 모범적인 후행 핵연료주기 연구과제로서 국제적으로 인정을 받고 있다. 이러한 개념을 바탕으로 DUPIC 핵연료 개발은 한국과 캐나다 및 미국이 참여하여 수행되고 있으며, 1996년부터는 국제 핵물질 감시기구인 IAEA도 참여하는 국제공동연구로서 활발히 진행되고 있다[1-4].

1993년도까지 수행한 타당성 연구의 결과로서 OREOX(Oxidation and Reduction of Oxide fuel)가 가장 바람직한 제조공정이라는 결론을 바탕으로 OREOX 공정을 이용한 핵연료 제조 및 이의 성능검증 연구를 수행 중에 있다. DUPIC 핵연료의 특징은 약 0.6%의 Pu를 비롯하여 다량의 핵분열 생성물을 포함하고 있으므로 물리적인 성질이 일반 핵연료와는 다르다는 것이다. 즉, 핵연료의 물성, 핵분열기체 방출 및 입자성장 등이 일반 핵연료와 다를 것으로 예상되므로 이러한 물성의 확보와 노내 거동 및 핵연료로서의 성능을 분석하기 위한 기초자료를 확보하는 것이 중요하다. 그러나 사용후 핵연료를 OREOX 공정을 거쳐 재 소결한 DUPIC 핵연료를 이용하여 열물성등을 직접 측정하는 것은 사용후 핵연료로부터 발생하는 높은 방사선량 때문에 실험실 규모의 연구에는 방사선 차폐등 많은 어려움이 따른다. 따라서 천연 이산화 우라늄에 핵분열 생성물을 첨가한 모의 경수로 사용후 핵연료를 이용하여 모의 DUPIC 핵연료를 제조할 수 있을 것으로 예측되며, 이를 DUPIC 핵연료의 물성등에 관한 연구에 활용할 수 있을 것으로 생각된다. 본 보고서에서는 모의 경수로 사용후 핵연료를 이용하여 모의 DUPIC 핵연료를 제조하기 위한 분말처리, OREOX, 성형 및 소결공정에 관하여 기술하였다.

2. 모의 사용후 핵연료 제조 연구현황

가. 서 설

원자력을 이용한 발전은 다른 화석연료에 비해 대기의 NO_x, SO_x 나 CO_2에 의한 오염인자가 없어 청정에너지로 알려져 있다. 다만 여기서 발생되는 사용후 핵연료의 처리가 원자력의 이용에 많은 제약이 되고 있다. 이런 사용후 핵연료의 안전한 저장이나 처리를 위해서는 사용후 핵연료의 물성에 관한 연구가 필요하지만 높은 방사능 때문에 실험실 규모의 연구에서 이를 직접 이용하기는 불가능 할 것으로 생각된다. 따라서 사용후 핵연료의 물성 및 거동에 관한 연구에 이용하기 위하여 천연우라늄으로 모의 사용후 핵연료를 제조하는 연구가 이루어지고 있다. 사용후 핵연료의 주요 특징은 핵분열 생성물과 핵분열기체의 방출이다. 핵분열기체는 핵연료 밖으로 방출되므로 사용후 핵연료에는 잔존하지 않는 것으로 간주하고 천연우라늄에 핵분열 생성물을 첨가하여 모의 사용후 핵연료를 만들 수 있다. 사용후 핵연료에 존재하는 핵분열 생성물은 다음과 같다.

- matrix 내에 용해된 원소 : Sr, Zr, Nb, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm;
- 금속 석출물 : Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sb, Te;
- 산화물 석출물 : Ba, Zr, Nb, Mo, (Rb, Cs, Te);
- 기화성 물질 : Kr, Xe, Br, I, (Rb, Cs, Te).

모의 사용후 핵연료에 대한 연구는 건식 재처리 및 핵연료 재가공실험을 수행하기 위한 목적으로 1962년부터 연구되었다. 모의 사용후 핵연료의 matrix 및 석출상[5-7]과 결정구조에서 산소 potential의 영향[8]에 대한 연구도 수행되었다. 또한, 금속석출물의 화학적 상태 및 기화압력에 관한 연구[9-11]도 수행되었으며, simulated mixed $(U, Th)O_2$ 핵연료에 대한 연구결과[12-14]에 의하면 UO_2의 것과 유사하다는 것도 알려지게 되었다. 기체 및 기화성 원소를 제외한 원소들을 첨가하여 연소도에 따른 UO_2-based 모의 사용후 핵연료 제조에 대한 연구가 수행되었다[15-17]. 이 모의 사용후 핵연료에는 기체 및 기화성 물질을 포함하지 않기 때문에 조사된 핵연료 내에서 관찰되는 bubbles는 포함하지 않는다. 또한, 기체 및 기화성 원소를 ion 주입방법[18-21]으로 모의 사용후 핵연료에 주입하여 온도에 따른 핵분열생성기체 방출의 거동을 연구하기도 하였다. 그리고, 연소도에 따른 핵연료의 열전도도를 평가하기 위한 연구[18,21,22]도 수행되었다.

이와 같이 모의 사용후 핵연료는 조사된 고연소도 핵연료를 대신할 수 있는 유일한 non-radioactive 물질이다. 모의 사용후 핵연료를 이용하면 쉽고 신뢰성 있는 측정과 원하는 시편을 상대적으로 많이 가질 수 있는 이점이 있으며, fission gas bubble와

균열이 없는 핵연료의 intrinsic 열전도도를 측정할 수 있다. 조사된 핵연료와 유사한 미세구조로 인하여 모의 사용후 핵연료는 다음과 같이 다양한 실험에 이용되고 있다.

- 열전도도(thermal conductivity)
- 핵분열생성기체 이동(fission-gas mobility)
- 산화거동(oxidation behavior)
- DUPIC(direct use of spent PWR fuel in CANDU) 핵연료 연구,
- 용해시험(leaching tests)
- 전기화학(electrochemistry)
- 핵연료-피복관 상호거동(fuel-zircaloy interaction)
- 조사손상 연구(radiation damages studies)
- 물리적 특성 연구(measurements of physical properties)

나. 모의 사용후 핵연료 조성

일반적으로 조사된 핵연료의 성분은 초기 성분과 노내에서의 출력이력에 의하여 결정된다. PWR에서 연소된 핵연료의 연소도에 따른 성분은 ORIGEN[23] 또는 ORIGEN-2[24]에 의하여 계산된다. 실제 모의 사용후 핵연료 제조시에 transuranium 원소와 Pr, 기타 희토류 원소와 Tc 등은 Cem Nd, Mo의 양으로 대치된다. In, Sb 등과 같은 원소들은 핵분열생성량이 작기 때문에 무시된다.

고연소도에서 핵연료의 구조를 모사하기 위해서는 모의 사용후 핵연료를 준비하는 동안에 핵분열생성물질로 첨가된 모든 원소들이 아주 미세하고 균일하게 분포되게 하는 것과 상평형에 도달하게 하는 것이 필요하다. 즉, 이것은 모의 사용후 핵연료 구성물이 매우 균일하게 혼합되어야 하고, 확산적인 혼합을 달성하기 위하여 열처리되어야 한다.

다. 모의 사용후 핵연료 제조

1) 일본[25,26]

연소도에 따라 계산되어 첨가되는 원소들의 양과 반응물은 Table 1과 같으며, 이를 각각 묽은 HNO_3용액에 용해시켰다. 먼저 Table 1과 같은 조성을 갖는 혼합용액을 준비하였다. 이것을 hot plate에서 건조시킨 후, 얻어진 혼합물은 Ru와 Mo의 기화손실을 피하기 위하여 4%H_2+96%He 분위기의 1173K의 혼합분위기(He, 50%CO + 50%CO_2, 10%CO + 90%CO_2, 4%H_2 + 96%He)에서 4시간동안 소결하였다.

2) 캐나다[16]

연소도에 따라 계산되어 첨가되는 원소들의 양은 Table 2와 같다. 11원소중 Ba는 $BaCO_3$로, 나머지 10개 원소는 산화물 형태로 UO_2와 submicrometre scale로 균일하게 혼합하였다. Atomic 수준에서 균질도를 확인할 수 있게 확산속도(diffusional rates)를 이루기 위해서 고온으로 가열되어야 한다. 이를 위해서 UO_2와 additives는 co-grinding되었다. Grinding은 습식 stirred-ball mill하여 spray 건조를 하였다. 그리고, 예비압분, 과립, 압분하여 1650℃ 환원분위기에서 2시간 소결하였다. 여기서도 실험목적에 따라 소결분위기를 조절하였다.

3) 독일[27]

농축도가 3.5% U-235인 LWR 핵연료의 핵분열 생성물은 OREGEN code를 이용하여 계산하였다. 첨가된 핵분열 생성물은 Table 3과 같으며 괄호안의 성분은 앞의 성분으로 대치하였다. 우라늄과 핵분열 생성물의 균일한 혼합을 위하여 알콜을 이용한 습식 볼밀링을 24시간 수행하였으며 건조후 Ar 분위기의 950℃에서 24시간 이상 예비반응을 시켰다. 조립화(granulation)후 분말을 단축방향으로 60% 성형밀도로 압축하였다. 성형체는 Ar/H_2(6%) 분위기의 1640℃에서 32시간 동안 소결하였으며, Zn stearate를 제거하기 위하여 400℃에서 일시 유지하였다.

Table 1. Composition of simulated spent fuel(ORIGEN-2, PWR, $_{235}U$=3.42%)

Element	Stand-in role	Burnup(%FIMA*)		Reagent
		5 (mg/gU initial)	10 (mg/gU initial)	
U		936.5	881.7	UO_2
Ce	Pr, Pu, Np, Am, Cm, La, Sm, Y, Eu, Gd, Pm	12.0	19.1	$Ce(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$
Nd		10.2	20.0	$Nd(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$
Cs		4.00	7.17	CsCl
Rb		0.48	0.77	RbCl
Ba		2.18	4.91	$BaCl_2 \cdot 2H_2O$
Sr		1.23	1.83	$Sr(NO_3)_2$
Zr		5.08	8092	$ZrO(NO_3)_3 \cdot 2H_2O$
Mo	Tc	5.92	11.1	$(NH_4)_6Mo_7O_{24} \cdot 4H_2O$
Ru		3.77	8.46	$RuCl_3 \cdot 3H_2O$
Rh		0.54	0.62	$Rh(NO_3)_3 \cdot 2H_2O$
Pb		2.36	7.02	$PdCl_2$
Ar		0.13	0.25	$AgNO_3$
Cd		0.22	0.86	$CdCl_2 \cdot 2.5H_2O$
Sn		0.15	0.34	$SnCl_2 \cdot 5H_2O$
Te		0.74	1.61	$TeCl_4$

* FIMA = ~10,000 MWd/MTU

Table 2. ORIGEN Code calculations and measured composition of 3 and 6 at% burnup SIMFUEL, as sintered.

Compound[a]	Overall[d] compostion(wt%)		Actual composition				
			ICPAES		WDX[b]		UO_2matrix[c]
	3 at%*	6 at%	3 at%	6 at%	3 at%	6 at%	6at%
UO_2(Pu)	97.68	95.31	-	-	-	-	-
$BaCO_3$	0.147	0.311	0.11	0.39	0.15	0.26	0.02
CeO_2(Np)	0.285	0.526	0.23	0.53	0.27	0.58	0.56
La_2O_3(Am, Cm)	0.106	0.194	0.09	0.15	0.08	0.20	0.19
MoO_3	0.359	0.730	0.28	0.64	0.26	0.62	-
SrO	0.072	0.11	0.06	0.12	0.05	0.13	0.06
Y_2O_3	0.041	0.061	0.03	0.07	0.03	0.06	0.06
ZrO_2	0.339	0.601	0.23	0.58	0.31	0.60	0.40
Rh_2O_3	0.028	0.031	0.02	0.03	0.01	0.04	-
PdO	0.149	0.440	0.14	0.37	0.15	0.42	0.01
RuO_2(Tc)	0.364	0.764	0.30	0.69	0.28	0.71	-
Nd_2O_3(Pr,Pm,Sm)	0.460	0.912	0.41	0.87	0.37	0.85	0.85

a) Concentration increased to account for the elements in parentheses.

b) Average determined by WDX scanning five different 200㎛ ×200㎛ areas.

c) Average determined by WDX on five UO_2 matrix grains in spot mode showing the dissolved additives.

d) ORIGEN Code - To calculate the fission-product compositions, a constant linear power of 60 kW/m and an initial neutron flux of 5.5 × 1014 n/cm^{2}s were used with no subsequent cooling out of reactor. Idealized conditions were assumed; constant power throughout the irradiation period and the same flux through fuel, although, in practice, the linear power decreases with burnup and the flux is not adequate for any reactor type at normal power ratings.

Table 3. ORIGEN code calculations and measured compositions of 3 and 6 at% burnup SIMFUEL,as sintered

Compound	Overall composition(wt.%)	
	3 at%	6 at%
UO_2(PU)	97.68	95.31
$BaCO_3$	0.147	0.311
CeO_2(Np)	0.285	0.526
La_2O_3(Am,Cm)	0.106	0.194
MoO_3	0.359	0.730
SrO	0.072	0.110
Y_2O_3	0.041	0.061
ZrO_2	0.339	0.601
Rh_2O_3	0.028	0.034
PdO	0.149	0.440
RuO_2(Tc)	0.364	0.764
Nd_2O_3(Pr,Pm,Sm)	0.460	0.912

3. 모의 DUPIC 핵연료 소결체 제조

가. 서 설

DUPIC 핵연료 소결체 역시 사용후 핵연료의 경우와 마찬가지로 모의 핵연료을 제조하여 핵연료의 물성과 노내 거동에 관한 실험에 널리 이용될 수 있다. DUPIC 핵연료는 사용후 핵연료를 산화/환원(OREOX) 공정을 이용하여 탈피복시켜 재소결하는 것으로 모의 DUPIC 핵연료을 제조하는 것은 모의 사용후 핵연료를 제조하는 것과는 다른 공정을 거치게 된다. 즉, 모의 DUPIC 핵연료는 모의 사용후 핵연료의 제조와는 다르게 모의 사용후 핵연료를 3번의 산화환원을 거쳐 재소결하여 제조한다. 모의 DUPIC 핵연료의 제조공정은 그림 1에 나타내었다. 핵분열 생성물과 UO_2 분말을 균일하게 혼합한 후 분말의 입도를 작게 하기 위하여 attritor miller에서 분쇄시킨다. 성형시 충진율을 높이기 위하여 약 1 ton/cm^{2}의 압력으로 조립화(granulation)를 시행한 후 본 성형을 한다. 소결은 환원성 분위기(100% H_2)에서 소결한다. 이렇게 소결된 모의 사용후 핵연료를 3회의 OREOX 공정을 거쳐 분말로 만들어 위의 제조공정을 반복하여 모의 DUPIC 핵연료를 제조한다.

나. 제조 실험

1) 재료

모의 DUPIC 핵연료 제조를 위하여 천연 이산화우라늄(UO_2)은 ADU (Ammonium diuranate)공정으로 제조된 분말을 이용하였다. 가압경수로에서 33 MWd/kgU 까지 연소된 사용후 핵연료를 모사하기 위하여 첨가된 핵분열 생성물은 ORIGEN-2 코드를 이용하여 계산하였으며, 휘발성 물질은 배제하고 함량이 높은 15개 원소를 선정하여 첨가하였다. 이중에서 시중에서 구하기 어려운 성분은 특성이 비슷한 원소로 대치하여 첨가하였으며, 첨가된 핵분열 생성물의 양은 table 4에 나타내었다. 핵분열 생성물을 작은 입자로 만들기 위하여 mortar에서 곱게 갈은 후 UO_2 분말과 균일하게 혼합하기 위하여 turbular에서 약 12시간 혼합하였다.

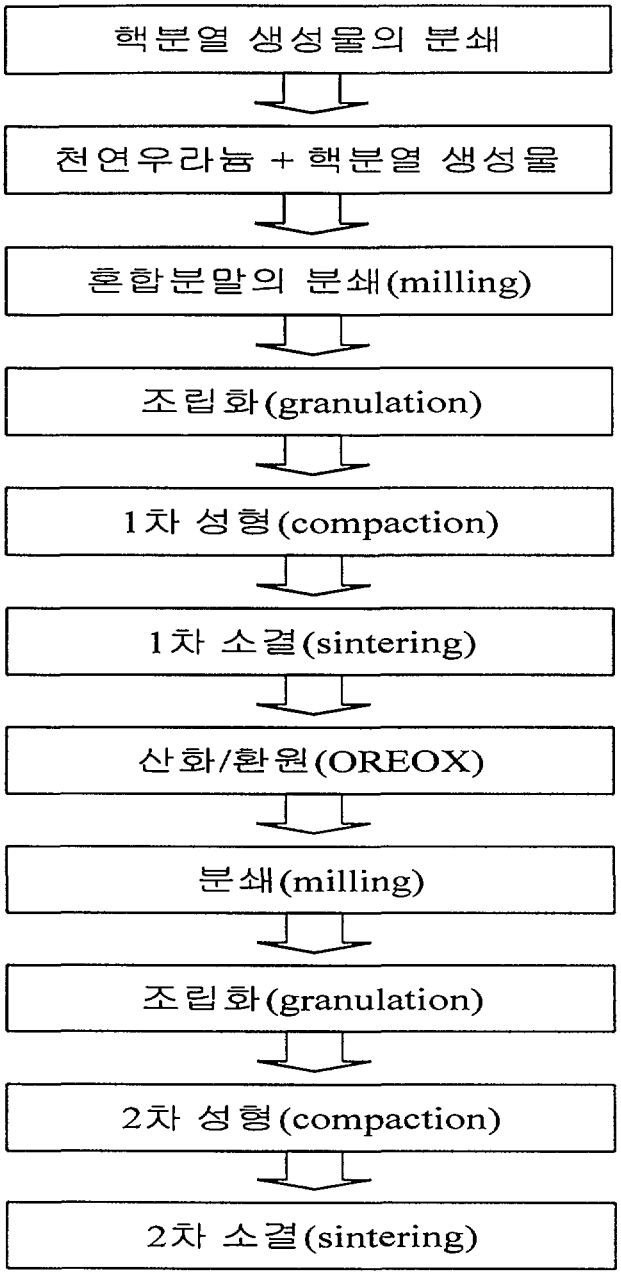


Fig. 1. Flow chart of manufaturing process of simulated DUPIC fuel

Table 4. Contents of fission products added to UO_2

Elements	원자량	첨가량 g/1000g U	Oxides	분자량	Oxides 량 g/1000g U
Zr	91.22	4.347	ZrO_2	127.22	6.060
Mo	96	4.040	MoO_3	144	6.060
Ru	101.07	2.767	RuO_2	137.07	3.753
Pd	106.4	1.921	PdO	122.4	2.210
Ba	137.33	2.247	$BaCO_3$	197.33	3.229
La	138.9	1.474	La_2O_3	162.9	1.729
Ce	140.12	2.865	CeO_2	176.12	3.601
Pr	140.91	1.346	Pr_2O_3	164.91	(1.575)
Nd	144.24	4.896	Nd_2O_3	168.24	5.711
Sm	150.36	1.035	Sm_2O_3	174.36	(1.200)
Rb	85.47	4.160	Rb_2O_3	109.47	(5.328)
Sr	87.62	8.694	SrO	103.62	1.028
Y	88.9	5.329	Y_2O_3	112.9	6.768
Rh	102.9	5.053	Rh_2O_3	126.9	6.231
Te	127.6	6.021	TeO_2	163.6	7.720

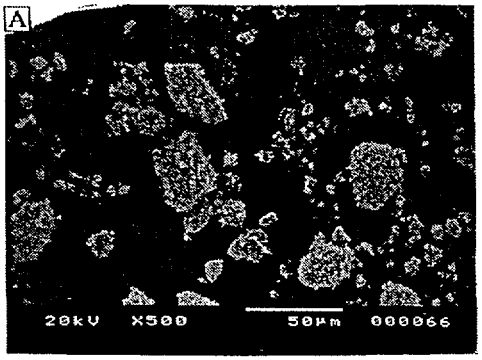
괄호안의 oxide 양은 Nd로 대치한 양임

2) 분말 처리

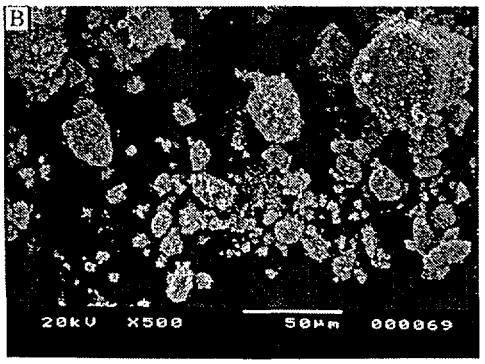
분말은 성형성 및 소결성을 높이기 위하여 분말의 입도를 작게, 유동성을 높게 그리고 비표면적을 넓게하는 방향으로 처리하였다. 핵분열 생성물이 혼합된 분말의 입자크기를 작게 하기 위하여 약 400g을 attrition miller에 장입하여 150 rpm의 arm 회전속도로 약 15분간 분쇄하였으며, 5회 반복하였다. 매 분쇄때마다 약 10g을 채취하여 분쇄횟수에 따른 분말의 특성변화를 측정하였다. 그림 2는 분쇄에 따른 분말의 형상을 나타낸 것이다. 입자의 모양은 분쇄에 따라 입자의 크기가 작아지면서 서로 들러붙는 현상(agglomeration) 때문에 덩어리 형태로 나타났다. 분쇄횟수에 따른 입자의 크기변화는 그림 3에 나타내었다. 초기에 분쇄하지 않은 분말의 입도가 3.28μm에서 1회분쇄후 입도 1.68μm, 5회분쇄후 입도 0.5μm까지 분쇄횟수가 증가할수록 입도는 작아지는 것으로 나타났다. 5회 분쇄된 분말은 입자의 크기가 너무 작기 때문에 분말의 유동성 및 충진율을 높이기 위하여 조립화를 시켰다. 즉, 약 1 ton/cm^{2}의 압력으로 예비 성형한 성형체를 mortar에서 약하게 갈은 후 35번 채를 이용하여 조립화(granulation)를 실시하였다.

3) 성형 및 소결

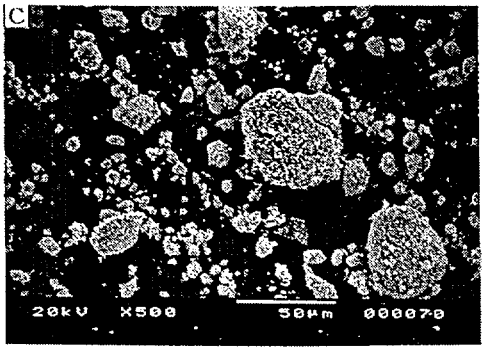
건전한 성형체를 만들기 위한 변수로는 분말의 유동성, 충진율, 분말간의 마찰, 분말의 크기, 분말과 성형다이의 마찰 및 성형압력등이 있다. 분말간의 마찰을 줄여 유동성과 충진율을 높이는 방법으로 윤활재를 분말에 섞는 방법이 있으며, 성형다이와 성형체 간의 마찰에 의해 응력분포가 불균일하게 되는 것을 막기 위하여는 Zn stearic acid를 벤젠에 녹여 성형다이의 벽면에 도포하는 방법이 있다.



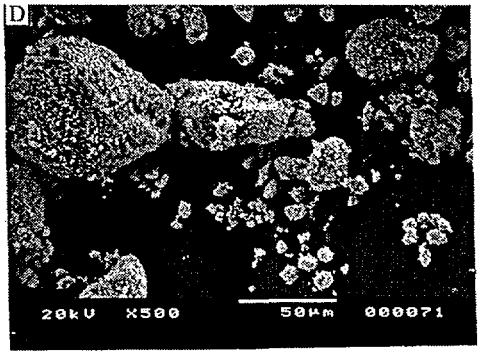
1 time milling



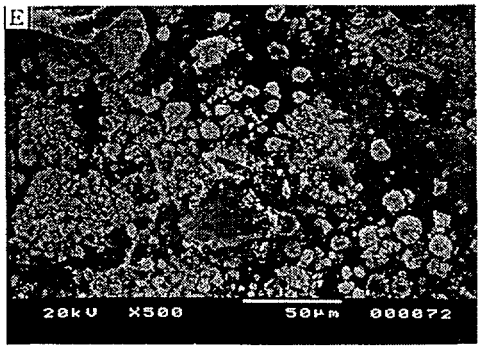
2 times milling



3 times milling



4 times milling



5 times milling

Fig. 2. SEM morphologies of the powder after attrition milling.

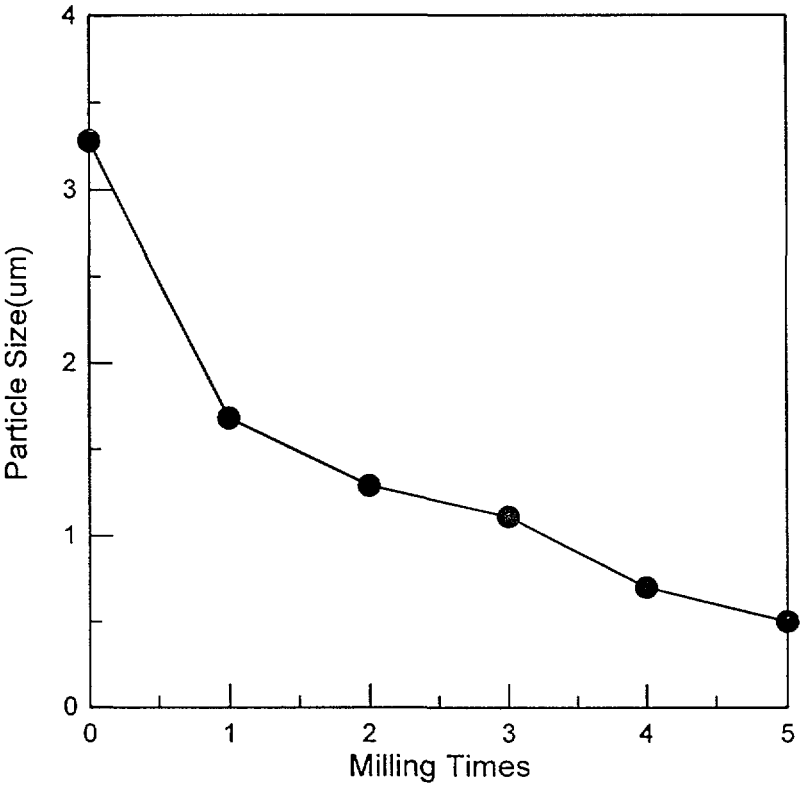


Fig. 3. Variation in particle size due to milling times.

- 1차 소결실험

성형의 여러변수들 중에서 조립화 및 윤활재가 성형 및 소결에 미치는 영향을 알아보기 위하여 조립화를 한 분말과 안한 분말을 대상으로 성형하였다. 윤활재로는 Zn stearate를 사용하였으며, 약 0.2wt%의 윤활재를 섞고 조립화를 시행한 분말, 윤활재를 섞지 않고 조립화만 시행한 분말과 윤활재를 섞지 않고 조립화도 시행하지 않은 분말을 대상으로 비교 실험을 수행하였다. 성형다이의 벽면에 윤활재를 도포하지 않았을 경우는 위의 세종류 분말 모두 마찰음이 발생하기 때문에 벽면에 윤활재를 도포하여 실험을 수행하였다. 성형압의 영향을 알아보기 위하여 성형압을 1.878, 2.086, 2.295 ton/cm^2 으로 변화시키면서 성형하였으며 직경 9.8mm인 성형다이를 이용하였다. Table 5는 분말의 종류에 따른 성형체의 칫수와 밀도를 나타낸 것이다. 소결은 환원성 분위기(100% H_2)의 1700℃에서 4시간 동안 수행하였다. 그림 4은 시간에 따른 온도변화를 나타낸 것이며,초기에 상온에서 소결로내로 Ar 가스를 약 10분간 흘려 불활성 분위기로 만든 후 700℃ 까지 분당 5℃로 가열하였다. 700℃에서 윤활재인 Zn stearate를 휘발시키기 위하여 약 1시간 동안 유지시켰으며, 1700℃에서 약 4시간 유지시켰다. 소결이 끝난 후 냉각에 의해 소결체의 내부와 외부의 온도차에 의한 균열 발생을 막기 위하여 가열율 보다 낮은 분당 4℃의 속도로 냉각시켰다. 그림 5는 소결결과를 나타낸 것이다. 밀도는 9.936 g/cm^3 에서 10.041 g/cm^3 으로 나타났으며 이는 이론밀도(10.7343 g/cm^3)의 약 92.563 % 에서 93.541 % 로서 전반적으로 밀도가 낮게 나타났다. 윤활재를 섞지 않은 것이 섞은 것보다 높은 밀도를 보이고 있으며, 조립화를 시킨 것이 더 높은 밀도를 나타내고 있다. 또한 성형압에 비례하여 밀도가 증가하는 것으로 나타났다. 따라서 높은 밀도의 소결체를 만들기 위해서는 성형할 때 성형다이 벽면에 윤활재를 도포하고 분말에는 섞지않는 것이 유리하며, 조립화를 시행하고 성형압을 높이는 것이 유리하다. 그림 6에서 8는 분말 종류에 따른 소결체의 기공의 형태를 나타낸 것이다. 그림 6은 윤활재를 섞고 조립화를 한 분말의 소결체 기공을 나타낸 것으로 기공의 크기나 형태가 불규칙하게 나타났다. 이는 윤활재가 소결시 약 700℃에서 휘발되어 날라간 자리가 기공으로 나타났기 때문으로 생각된다. 그림 7은 윤활재를 섞지않고 조립화를 한 분말의 소결체 기공을 나타낸 것으로 기공의 크기나 형태가 그림 6보다는 균일하게 나타났다. 그림 8은 윤활재를 섞고 조립화도 하지않은 분말의 소결체 기공을 나타낸 것으로 기공의 크기나 형태가 그림 6보다는 균일하나 그림 7보다는 불균일하게 나타났다. 따라서 기공의 형태 측면에서도 윤활재를 분말에는 섞지않고 조립화만 하는 것이 유리하게 나타났다. 실험의 모든 소결체에서 크랙이 발생하였다.

Table 5. Variation in green density due to powder treatment and compaction pressure.

ID	Diameter(mm)	Length(mm)	Mass(g)	Density(g/cm^3)
1	10.044	11.707	5.01	5.401
2	10.041	11.740	5.00	5.378
3	10.047	11.628	4.995	5.418
4	10.046	11.906	5.009	5.308
5	10.043	11.710	4.991	5.380
6	10.047	11.769	5.017	5.377
41	10.048	11.565	4.999	5.451
51	10.052	11.442	4.997	5.432
61	10.048	11.442	4.993	5.503

ID 1,2,3 : Zn stearate mixed and granulated

4,5,6 : no Zn stearate mixed and no granulated

41,51,61 : no Zn stearate mixed and granulated

1,4,41 : 1.878 ton/cm^2

2,5,51 : 2.086 ton/cm^2

3,6,61 : 2.295 ton/cm^2

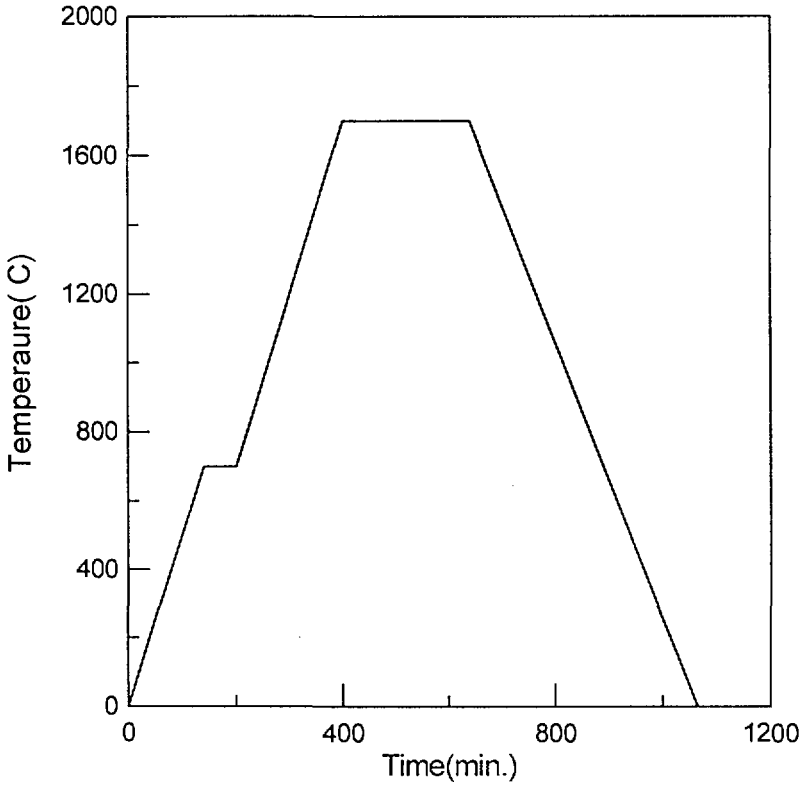


Fig. 4. Variation of sintering temperature with time

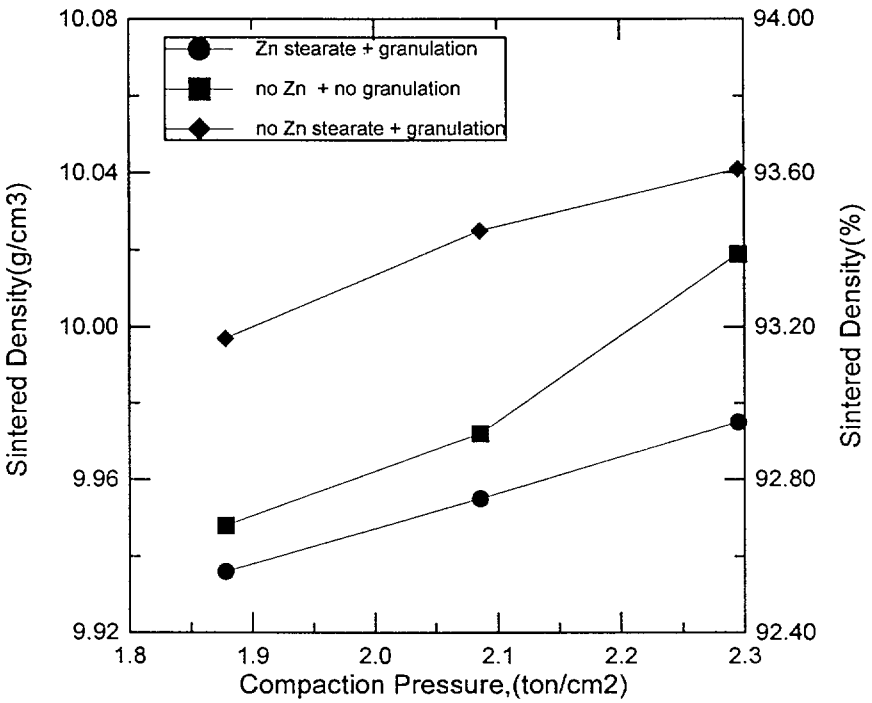
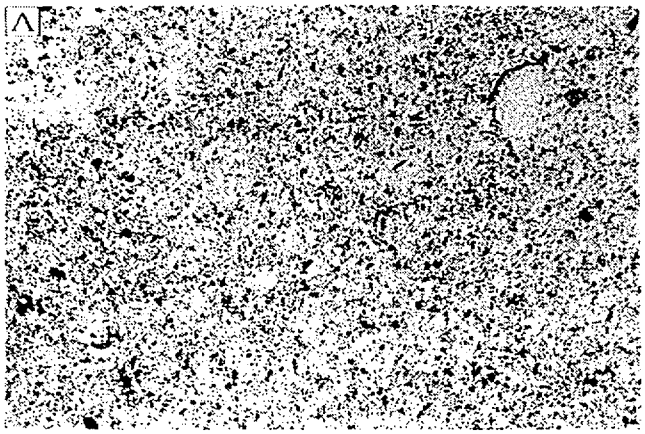
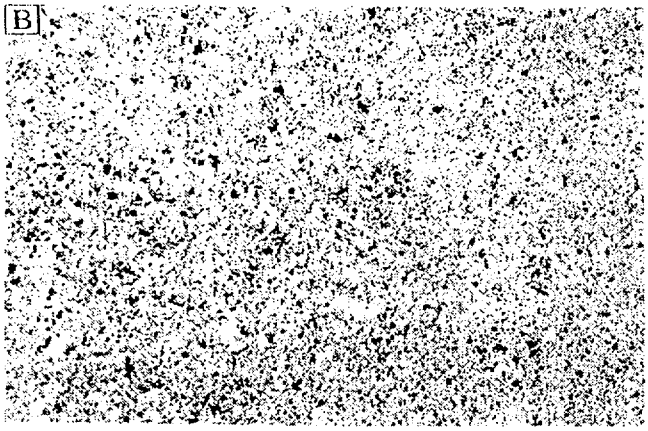


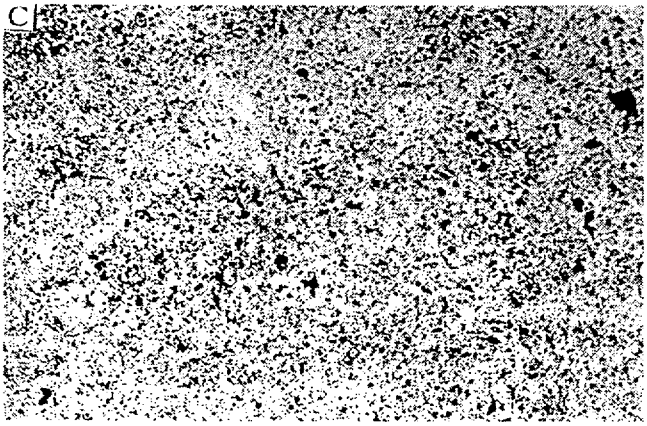
Fig. 5. Sintered density due to compaction pressure



Compaction pressure : 1.878 ton/cm^2

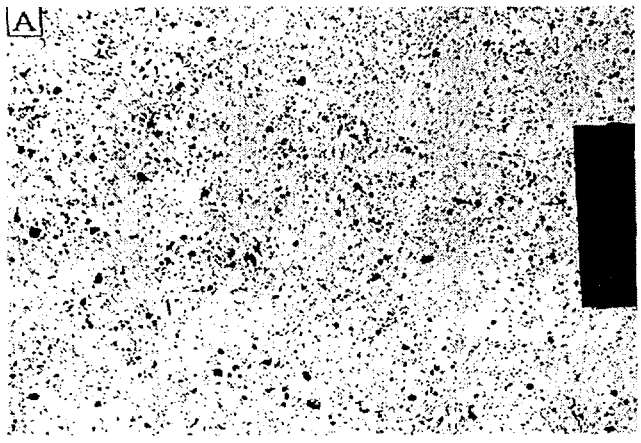


Compaction pressure : 2.086 ton/cm^2



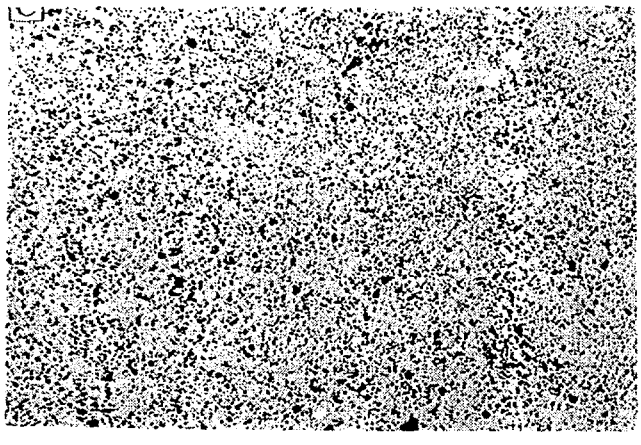
Compaction pressure : 2.295 ton/cm^2

Fig. 6. Pore structure of pellet mixing Zn stearate and granulating



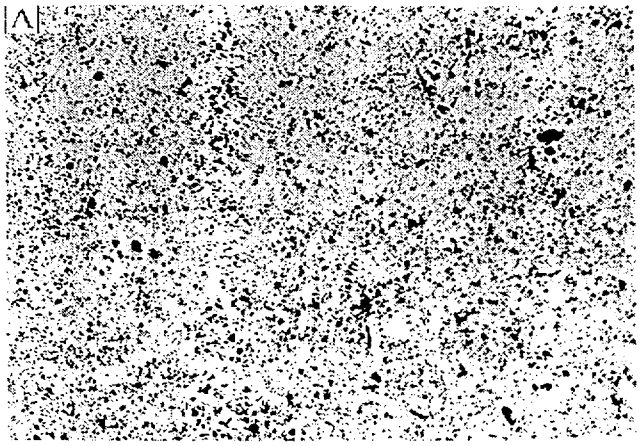
Compaction pressure : 1.878 ton/cm^2

Compaction pressure : 2.086 ton/cm^2

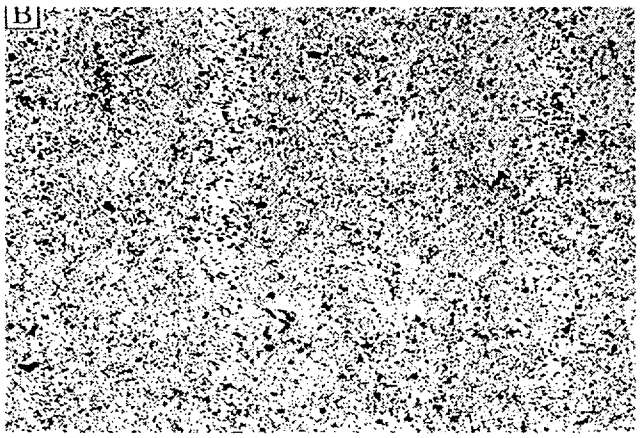


Compaction pressure : 2.295 ton/cm^2

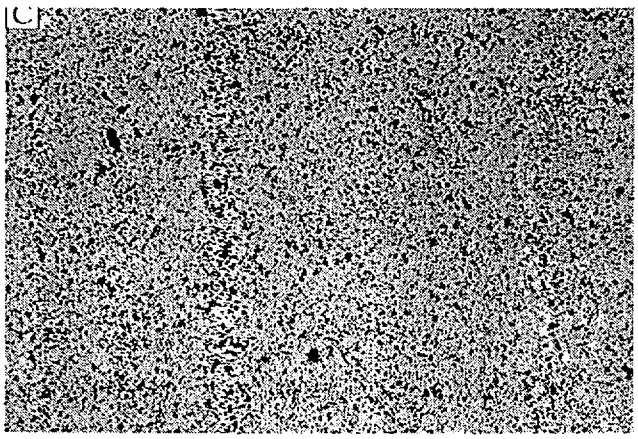
Fig. 7. Pore structure of pellet granulating and no mixing Zn stearate



Compaction pressure : 1.878 ton/cm^2



Compaction pressure : 2.086 ton/cm^2



Compaction pressure : 2.295 ton/cm^2

Fig. 8. Pore structure of pellet no granulating and no mixing Zn stearate

- 2차 소결

위의 실험에서 밀도가 너무 낮게 나왔기 때문에 밀도를 높이기 위하여 성형압을 증가시키고 소결시간을 길게하여 실험을 수행하였다. 윤활재는 다이 벽면에만 도포하고 조립화를 시행하였다. 분말은 3회 분쇄한 분말과 5회 분쇄한 분말을 대상으로 하였으며 성형압은 1.725 ton/cm^2에서 3.22 ton/cm^2까지 변화시키면서 13.23mm 다이를 이용하여 성형하였다. Table 6과 그림 9는 성형압에 따른 성형밀도를 나타낸 것이다. 성형밀도는 성형압에 따라 직선적으로 증가하는 것으로 나타났으며 분쇄횟수가 많을수록 성형밀도가 높게 나타났다. 소결은 1차소결실험과 같은 방법으로 수행하였으며 소결시간을 10시간으로 증가시켰다. 그림 10과 11은 3회 및 5회 분쇄한 분말을 이용한 소결체의 기공과 결정립을 나타낸 것이다. 기공은 성형압이 증가할수록 적게 나타났으며 결정립의 치밀화가 더 많이 이루어 진 것으로 나타났다. 결정립의 크기는 분쇄횟수에 관계없이 약 10μm 정도로 양호하게 나타났다. ID 31, 33, 35의 밀도는 각각 9.804, 9.891, 9.881 g/cm^3으로 나타났으며 ID 51, 53의 경우는 9.894, 9.981 g/cm^3으로 분쇄횟수가 증가할수록 높은 밀도를 나타내었으나 이론밀도에 크게 못미친다. 2차 소결실험에서 제조한 소결체의 크랙은 1차 소결체의 크랙에 비해 상당히 크게 나타났다. 이는 성형할 때 다이벽면에 윤활재의 도포차이등 여러 원인이 있을 수 있으나 1차 실험에 사용된 다이는 기존에 많이 사용하던 다이이지만 2차 실험에 사용한 다이는 새것으로 다이와 펀치사이의 유격등에 대해 검증되지 않은 것으로 다이 자체의 영향일 수도 있을것으로 생각된다.

- 3차 소결실험

소결체의 밀도에 미치는 소결온도의 영향을 알아보기 위하여 소결온도를 높이고 소결시간은 같게하여 실험을 수행하였다. 즉 소결온도를 1750℃까지 올리고 소결시간은 4시간 유지하였다. 실험 시편은 1차소결실험의 성형체 ID 1,2,3과 같은 조건의 성형체(11, 21, 31)와 2차소결실험에서 성형한 ID 32, 34, 36, 52, 54, 56 성형체를 이용하여 실험을 수행하였다. ID 11, 21, 31의 소결체는 크랙이 1, 2차 실험에 비해 크게 줄어들었으나 ID 32 - 56의 소결체는 크랙이 심하게 관찰되었다. 이는 앞에서 언급한 것처럼 다이의 영향으로 생각된다. 그림 12는 성형압에 따른 소결밀도를 1차 소결실험의 결과와 비교하여 나타낸 것이다. 소결밀도는 9.999 - 10.059 g/cm^3으로 1차소결밀도보다 높게 나타났다. 그림 13은 소결체의 기공과 결정립을 나타낸 것이다. 성형압이 증가할수록 기공이 줄어들고 결정립의 치밀화가 더 많이 이루어 졌으며 이로인해 밀도가 증가한 것으로 생각된다. 결정립의 크기는 성형압에 관계없이 약 3μm 정도로 작게 나타났다.

Table 6. Dimensions and densities of green pellets

ID	Diameter(mm)	Length(mm)	Mass(g)	Density(g/cm^3)
31	13.306	14.675	10.993	5.387
32	13.307	14.386	11.001	5.498
33	13.312	14.185	11.000	5.572
34	13.313	14.024	11.004	5.637
35	13.318	13.731	11.009	5.755
36	13.320	13.498	10.999	5.848
51	13.288	14.259	10.997	5.561
52	13.295	13.848	11.001	5.722
53	13.305	13.576	11.004	5.830
54	13.308	13.442	11.003	5.885
55	13.310	13.412	11.007	5.898
56	13.310	13.034	11.005	6.068

ID : 31 - 36 : 3 times milled powder

51 - 56 : 5 times milled powder

2nd number 1 : 1.725 ton/cm^2

2 : 2.070 ton/cm^2

3 : 2.300 ton/cm^2

4 : 2.530 ton/cm^2

5 : 2.875 ton/cm^2

6 : 3.220 ton/cm^2

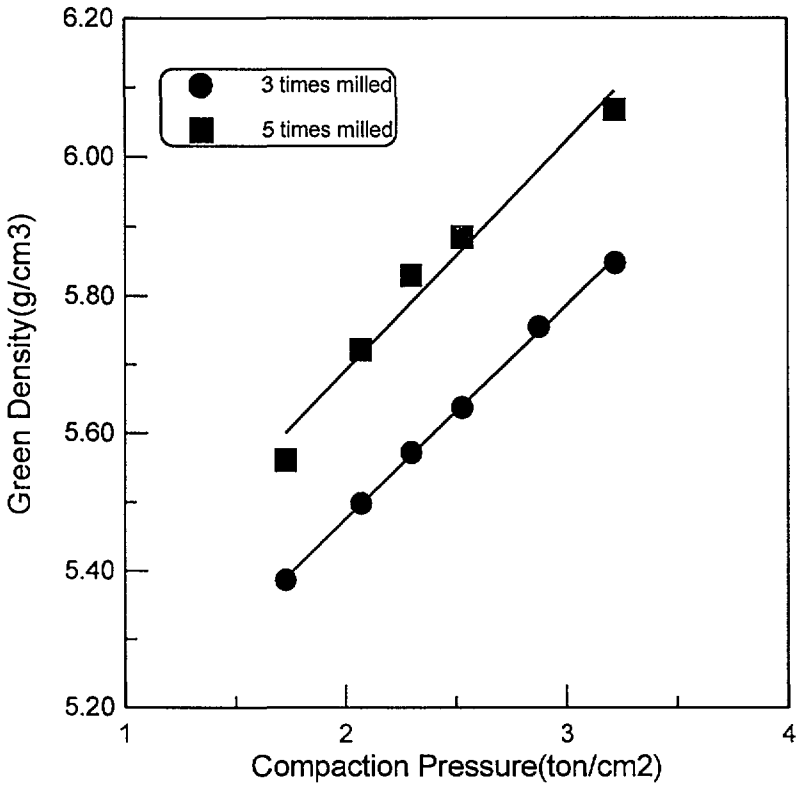
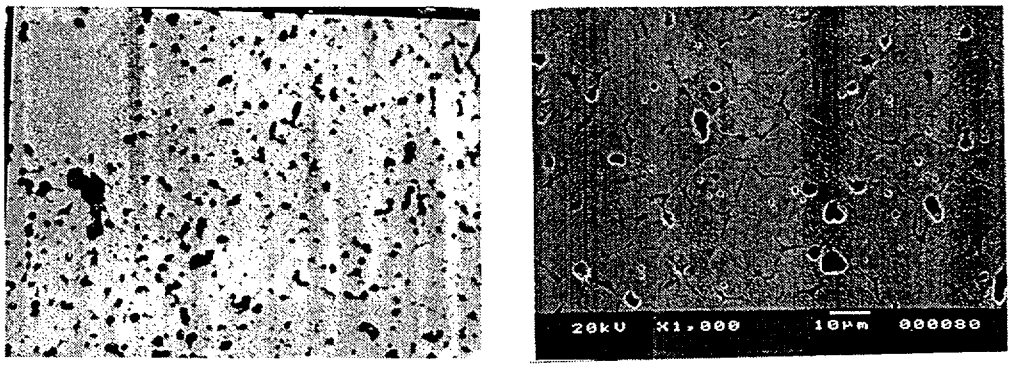
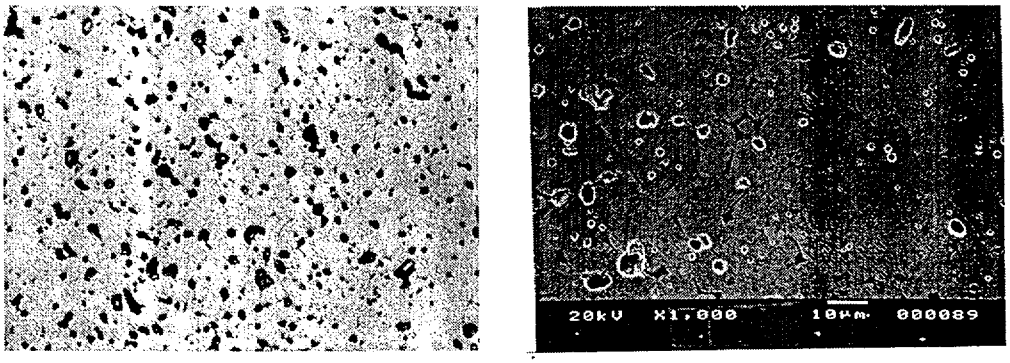


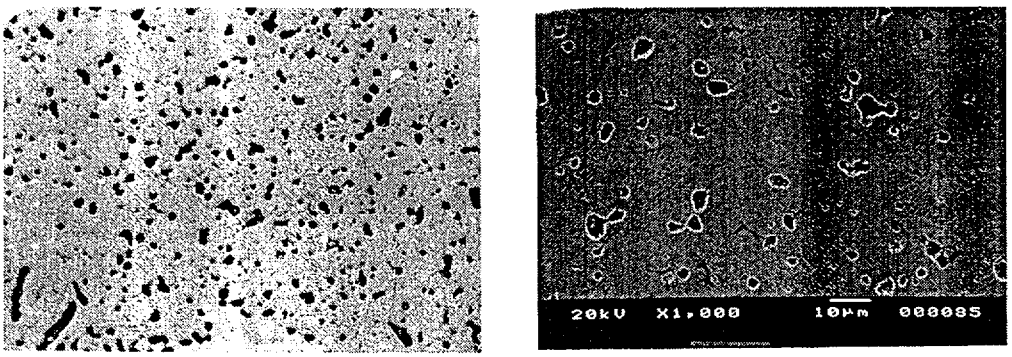
Fig. 9. Variation of green density due to the compaction pressure



Compaction pressure : 1.725 ton/cm^2

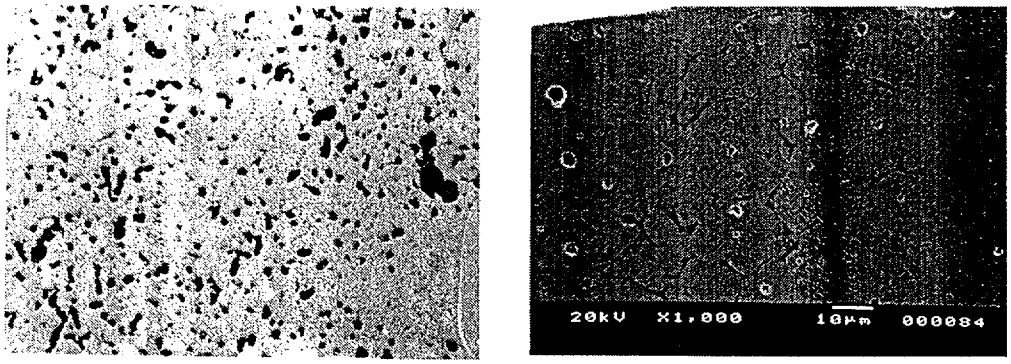


Compaction pressure : 2.300 ton/cm^2

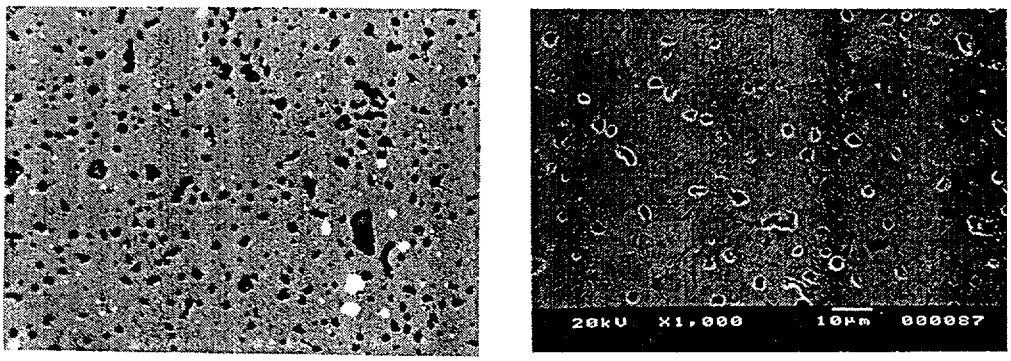


Compaction pressure : 2.875 ton/cm^2

Fig. 10. Pore and grain morphology of sintered pellet with 3 times milled powder.(1700℃, 10hr)



Compaction pressure : 1.725 ton/cm^2



Compaction pressure : 2.300 ton/cm^2

Fig. 11. Pore and grain morphology of sintered pellet with 5 times milled powder.(1700℃, 10hr)

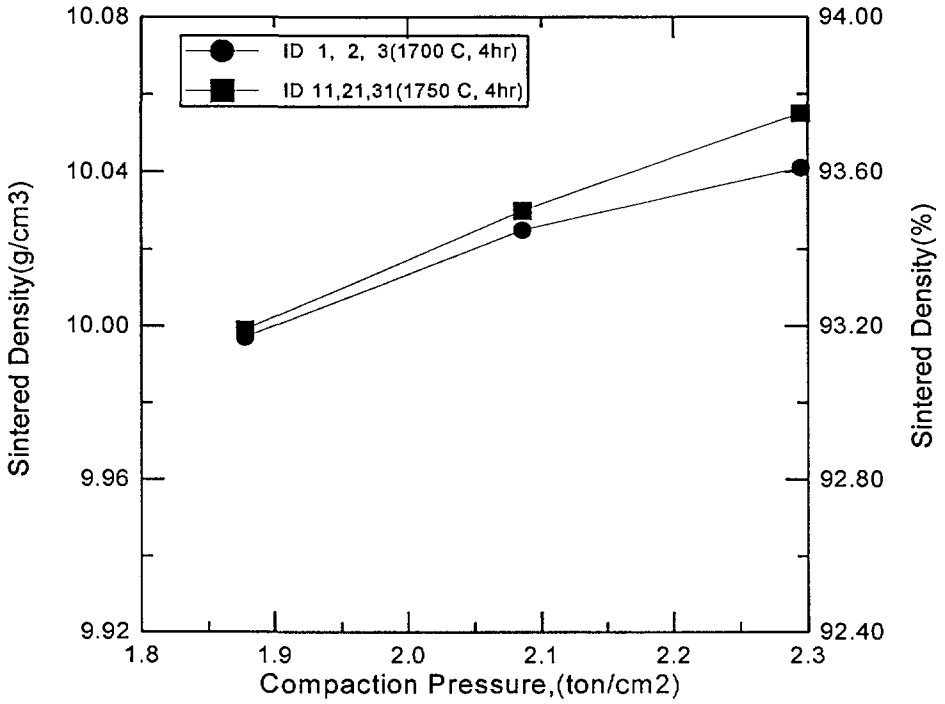
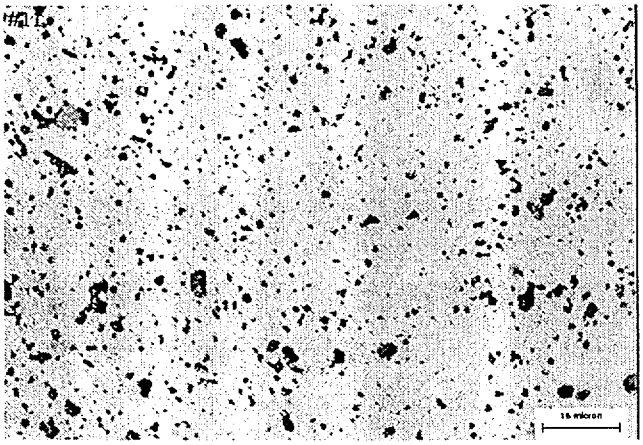
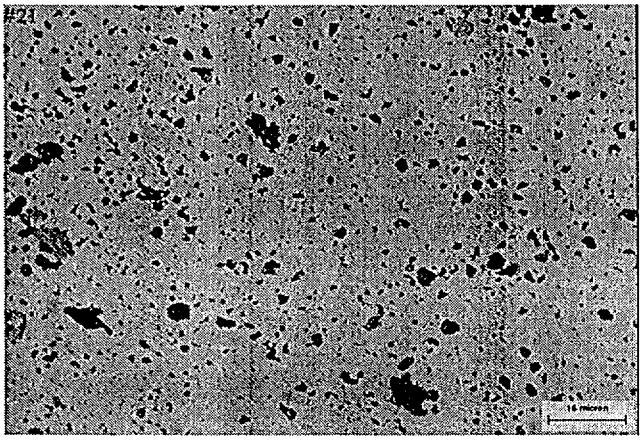


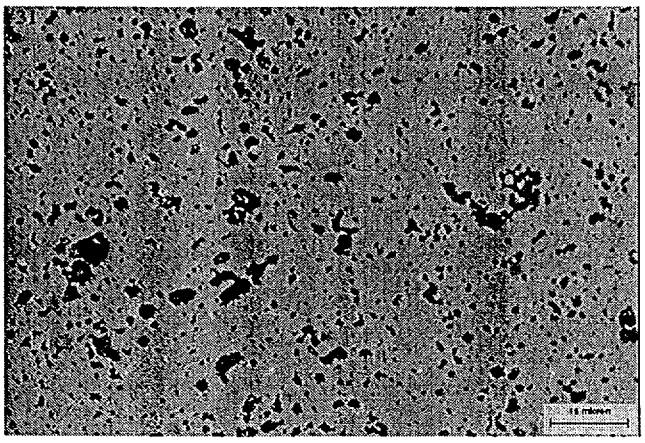
Fig. 12. Variation of sintered densities due to compaction pressure



Compaction pressure : 1.878 ton/cm^2



Compaction pressure : 2.086 ton/cm^2



Compaction pressure : 2.295 ton/cm^2

Fig. 13. Pore morphology of sintered pellet due to compaction pressure (1750℃, 4hr)

- 4차 소결실험

3차실험에서 소결온도를 증가시킬 경우 결정립의 치밀화가 많이 이루어져 소결온도를 증가시키는 것이 소결체의 밀도를 증가시키기 위해서 바람직한 것으로 나타났으며, 성형다이의 선택이 크랙의 발생 유무에 영향을 주는 것으로 나타났다. 따라서 직경 15.43 mm의 성형다이를 이용하고, 소결온도는 1800℃, 소결시간은 10시간으로 실험을 수행하였다. 분말은 5회 분쇄한 분말을 대상으로 실험을 수행하였다. 표 7과 그림 14는 성형압에 따른 성형밀도를 나타낸 것이다. 성형밀도는 성형압이 2 - 3 ton/cm^{2}의 범위에서는 선형적으로 비례하는 것으로 나타났다. 즉, 성형밀도는 성형압의 1차함수로 나타낼수 있다.

$$GD = 0.2517P + 5.1134 \ (2.244 \leq P \leq 2.9529)$$

여기서 GD는 성형밀도(green density, g/cm^3)를 나타내며, P는 성형압(ton/cm^2)을 나타낸다.

그림 15는 소결체의 밀도를 나타낸 것이다. 소결밀도는 성형압에 따라 2차함수에 비례하여 증가한다. 즉

$$SD = -0.083P^2 + 0.517P + 9.575$$

여기서 SD는 소결밀도(sintered density, g/cm^3)를 나타내며, P는 성형압(ton/cm^2)을 나타낸다.

전반적으로 소결밀도는 10.315 - 10.381 g/cm^{3}로 기존의 실험결과보다 크게 나타났으나 소결체 표면에 약 1 mm 깊이의 크랙이 수평과 수직으로 나타났다. 냉각속도가 5℃/min.로 너무 빠르고 소결체의 열전도도가 낮아 소결체 표면의 온도는 5℃/min.의 속도로 떨어지나 내부는 서서히 냉각되기 때문에 표면과 내부의 열팽창 차이에 의한 열응력을 견디지 못하고 수직방향의 크랙이 발생되는 것으로 생각된다. 또한 성형할 때 다이벽면에 윤활재 도포가 균일하지 못하여 벽면과 성형체 표면간의 마찰로 인해 성형체 표면에 응력이 균일하지 못하여 수평방향의 크랙이 발생하는 것으로 생각된다. 그림 16은 소결체의 기공과 결정립에 대한 조직사진을 나타낸 것이다. 압력에 따라 큰차이는 없으나 압력이 증가함에 따라 결정립의 크기가 증가하는 것으로 나타났다.

Table 7. Dimension and green pellet density due to compaction pressure 98.11.23

ID	Diameter(mm)	Length(mm)	Mass(g)	Density(g/cm^3)
11	15.492	11.175	12.008	5.700
12	15.490	11.133	12.006	5.720
21	15.492	12.057	13.015	5.720
22	15.496	11.973	13.009	5.760
31	15.496	11.900	13.010	5.800
32	15.499	11.822	13.015	5.840
41	15.520	11.762	13.019	5.850
51	15.491	11.749	13.019	5.880

ID : 11, 12 : 2.244 ton/cm^2
21, 22 : 2.480 ton/cm^2
31, 32 : 2.717 ton/cm^2
41 : 2.835 ton/cm^2
51 : 2.953 ton/cm^2

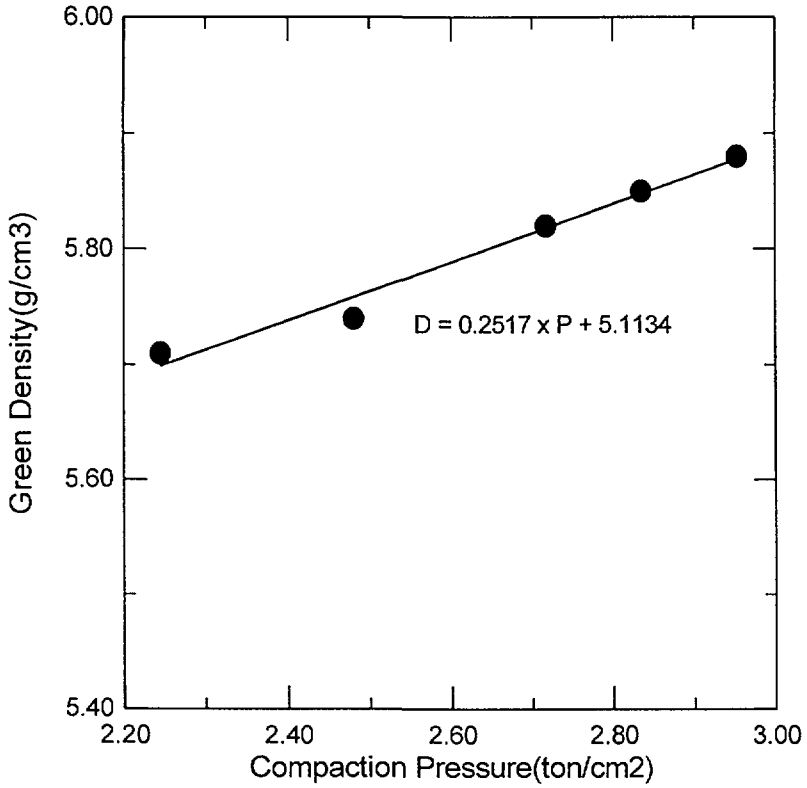


Fig. 14. Variation of green density due to compaction pressure

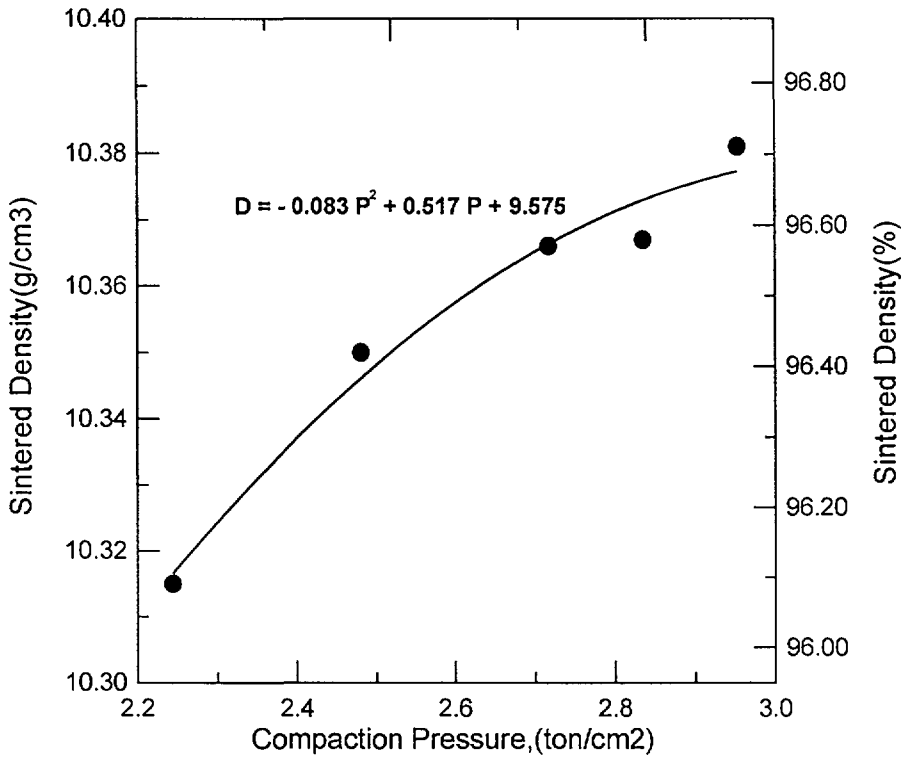
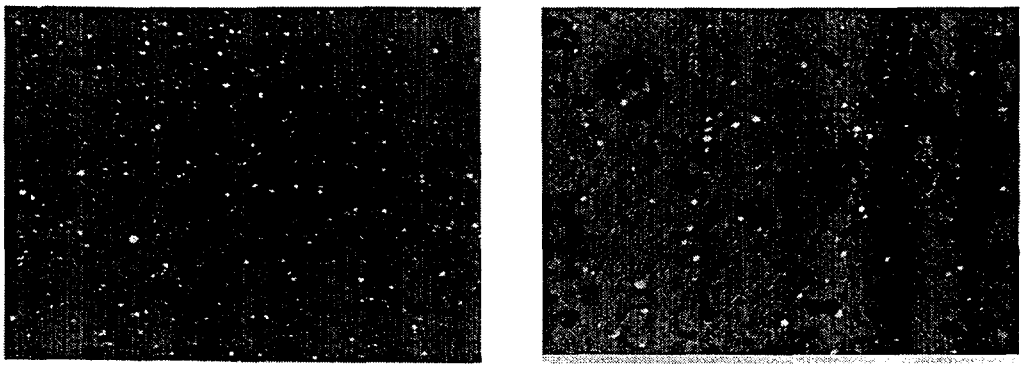
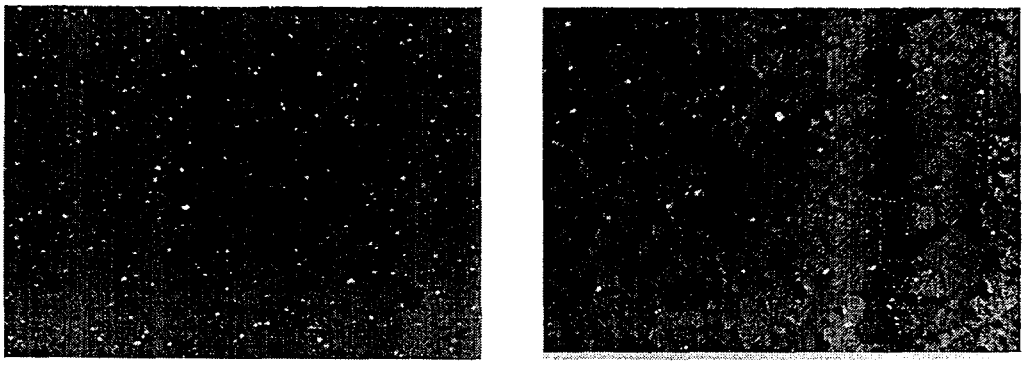


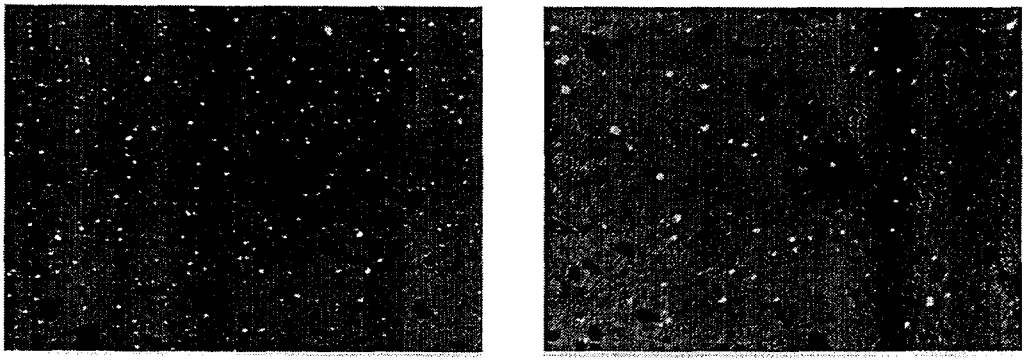
Fig. 15. Variation of sintered density due to compaction pressure (1800℃, 10hr)



Compaction pressure : 2.244 ton/cm^2



Compaction pressure : 2.480 ton/cm^2



Compaction pressure : 2.717 ton/cm^2

Fig. 16. Microstructiure of simulated spent fuel due to compaction pressure (1800℃, 10hr)

- 산화/환원실험

DUPIC 핵연료는 사용후 핵연료를 OREOX공정을 거친 분말을 재소결하여 제조하는 것으로 모의 DUPIC 핵연료 역시 모의 사용후 핵연료를 OREOX 공정을 거쳐 제조하여야 한다. 따라서 모의 DUPIC 핵연료를 제조하기 위하여 앞에서 제조한 모의 사용후 핵연료를 대상으로 OREOX 실험을 수행하였다. 산화는 공기분위기의 400℃에서, 환원은 수소분위기의 600℃에서 수행하였다. 산화/환원은 3회에 걸쳐서 수행되며, 1차산화는 소결체를 대상으로 수행되기 때문에 충분한 산화시간을 주기 위하여 약 24시간 동안 유지시킨다. 2, 3차는 1차 산화에서 소결체가 분말로 변하여 산소와의 반응면적이 넓기 때문에 1차 산화시간보다 짧은 16시간 동안 산화시킨다. 환원은 환원온도에서 약 8시간 동안 수행시킨다. 그림 17은 시간에 따른 산화/환원온도를 나타낸 것이다. 초기에 상온에서 산화온도인 400℃까지 가열하는 동안에도 공기중에서 산화가 되며, 400℃에서 약 24시간 산화된 후 환원시키기 위하여 환원기체인 수소를 공급할 때 산소의 접촉을 피하기 위하여 400℃에서 환원온도인 600℃로 가열을 시작할 때 불활성기체인 알곤을 약 5분간 공급하여 노내의 분위기를 불활성 분위기로 전환한 후 수소를 공급한다. 환원조건에서 산화조건으로 전환할 때도 5분간 알곤을 공급하여 불활성 분위기로 만든 후 산소를 공급한다.

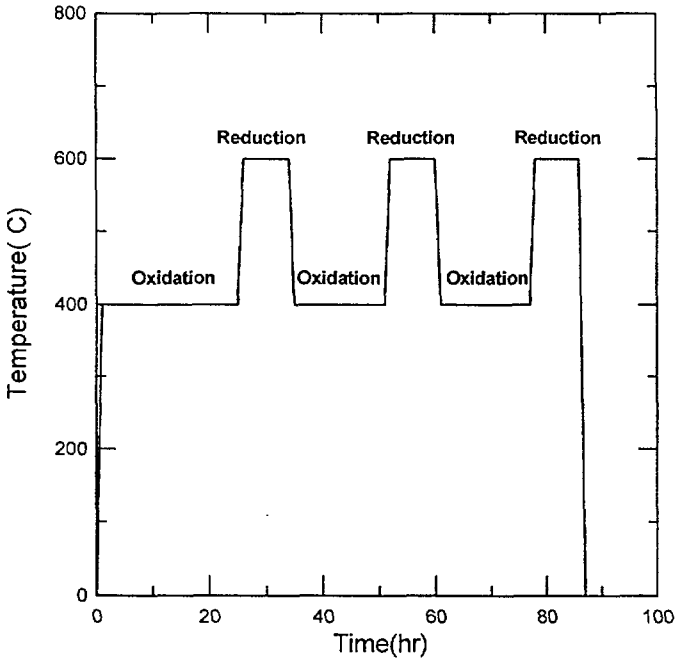


Fig. 17. Variation of OREOX temperature V.S. time

- 5차 소결실험

산화/환원공정을 거친 분말은 다시 5회의 분쇄과정을 거쳐 재소결하여 모의 DUPIC 핵연료를 제조하였다. OREOX 공정을 거친분말과 원료분말과의 차이를 확인하기 위하여 같은 조건으로 성형 소결하였다. 1.3~2.0 ton/cm^2의 압력으로 성형하였으며, 1800℃, H_2(100%) 분위기에서 약 10시간 소결하였다. 표 8과 그림 18은 성형압에 따른 성형밀도 및 소결밀도를 나타낸 것이다. 모의 사용후 핵연료의 경우는 성형압이 증가함에 따라 성형밀도 및 소결밀도가 증가하나, 모의 DUPIC 핵연료의 경우, 성형압이 증가함에 따라 성형밀도는 증가하지만 소결밀도는 성형압이 약 1.65 ton/cm^2까지 증가하다가 2.0 ton/cm^2에서는 오히려 감소하는 것으로 나타났다. 그림 19는 시편의 크랙형상을 나타낸 것이다. 크랙은 육안으로 관찰하여 전 시편에서 발생하였으며, 성형압이 높을수록 크랙의 길이와 깊이가 크게 나타났다. 모의 DUPIC 핵연료의 경우는 1.3 ton/cm^2에서는 깊이가 1mm 이하, 길이가 약 7mm의 크랙이 수평으로 발생하였으며, 1.65 ton/cm^2에서는 깊이가 약 2mm, 길이가 약 7mm의 크랙이 수평으로 발생하였다. 모의 사용후 핵연료의 경우는 깊이 약 4.5 mm의 크랙이 수평으로 발생하여 모의 DUPIC 핵연료보다 크게 나타났다. 크랙의 형상은 모든 시편에서 수평으로 발생하였다. 이는 성형할 때 다이면과 성형체간의 마찰에 기인하는 것으로 생각된다. 따라서 크랙이 없는 소결체를 만들기 위하여 다이벽면의 마찰을 줄이는 방법을 모색해야 한다.

Table 8. Green density and sintered density of simulated spent fuel and simulated DUPIC fuel due to compaction pressure

98.12.21

ID	Diameter (mm)	Length (mm)	Mass (g)	Green Density (g/cm^3)	Sintered Density (g/cm^3)
235 1100	15.475	13.324	13.003	5.19	10.057
235 1400	15.474	12.956	13.001	5.34	10.125
235 1700	15.478	12.837	12.997	5.38	10.149
OR 1100	15.462	10.977	13.007	6.31	10.037
OR 1400	15.432	10.976	12.990	6.33	10.222
OR 1700	15.463	10.860	12.998	6.37	10.142

ID : 235 : simulated spent fuel

OR : simulated DUPIC fuel

1100 : 1.3 ton/cm^2

1400 : 1.65 ton/cm^2

1700 : 2.0 ton/cm^2

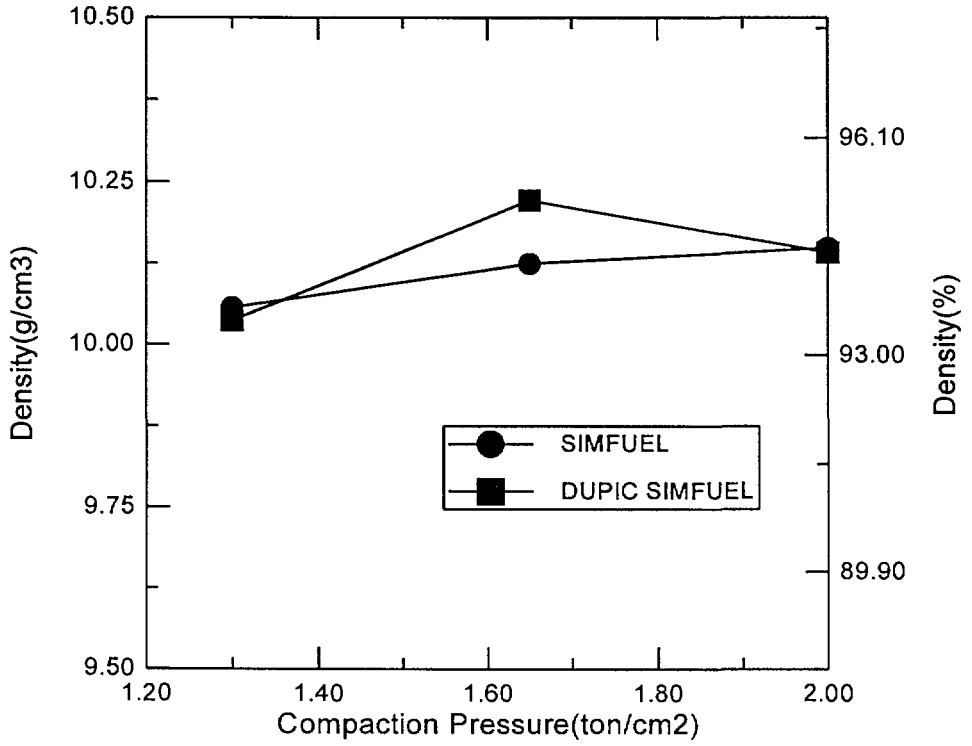
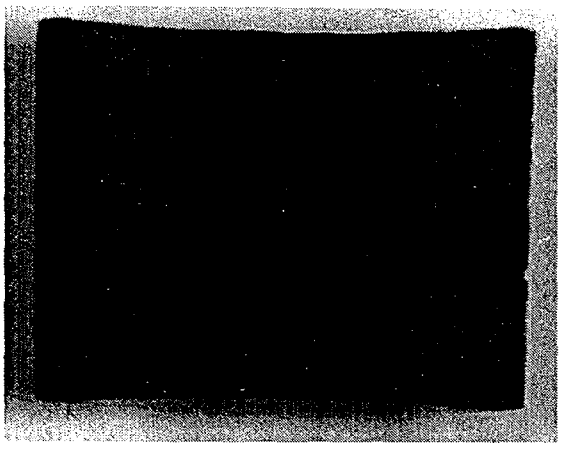
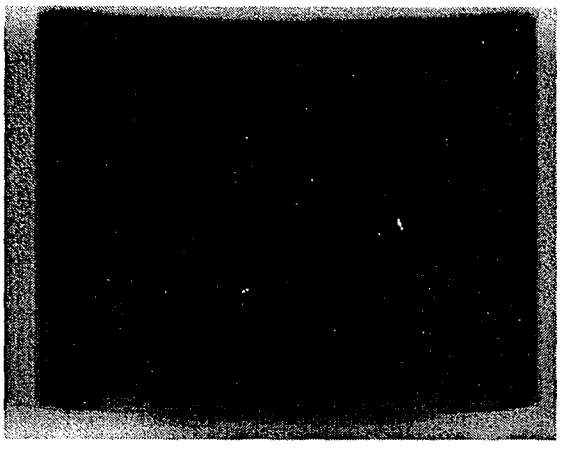


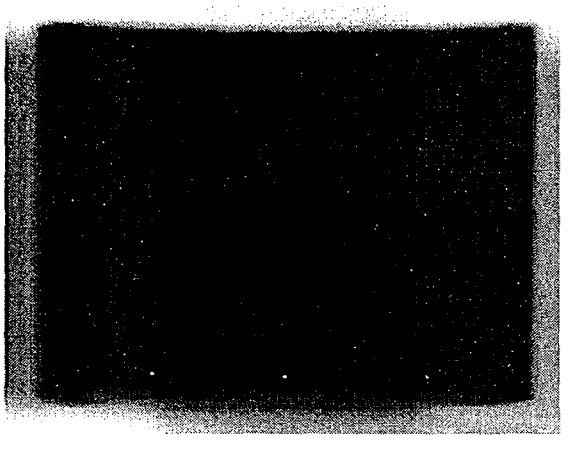
Fig. 18. Sintered density of simulated spent fuel and simulated DUPIC fuel due to compaction pressure



DUPIC SIMFUEL 1.3 ton/cm^2



DUPIC SIMFUEL 2.0 ton/cm^2



SIMFUEL 1.65 ton/cm^2

Fig. 19. Crack shapes of simulated spent fuel and simulated DUPIC fuel

- 6차 소결실험

크랙의 발생을 줄이고 높은 밀도의 소결체를 만들기 위하여 OREOX를 시행한 분말을 대상으로 소결하였다. 다이벽면에 윤활재 도포를 충분히하여 마찰을 줄이기 위해 벤젠에 Zn-stearite를 기존의 양에 약 2배 많게 녹여 도포하였다. 1.3~1.65 ton/cm^{2}의 압력으로 성형하였으며, 1800℃, H_2(100%) 분위기에서 약 10시간 소결하였다. 표 9는 성형압에 따른 성형밀도, 소결밀도와 소결전 후 펠렛의 수축율을 나타낸 것이다. 1.3~1.65 ton/cm^{2}의 범위에서는 성형밀도 및 소결밀도 모두 성형압에 비례하여 증가하는 것으로 나타났다. 소결밀도는 10.37~10.40 g/cm^{3}으로 이론밀도의 약 96.6~96.9%로 기존의 소결체에 비해 크게 나타났다. 수축율은 길이방향으로 약 15.7%, 반경방향으로 약 17.0%였으며 부피는 42% 정도 수축하였다. 그림 20은 선형압에 따른 소결 밀도를 나타낸 것이다. 모든 시편에 미세한 외부크랙이 존재하나 깊이는 약 1mm이하이며 길이는 약 5~10mm 정도였다. 이는 표면의 연삭으로 충분히 제거될 것으로 생각된다. 그림 21은 성형압이 1.3 및 1.54 ton/cm^2 일 때 소결체의 미세구조를 나타낸 것이다. 성형압의 차이에 따라 미세구조의 차이는 크게 없었다.

- 7차 소결실험

약 1.3 ton/cm^{2}의 성형압으로도 충분히 높은 소결밀도를 나타내므로 크랙을 줄이기 위하여 더 낮은 압력인 0.94~1.18 ton/cm^{2}로 성형하였으며, 밀도를 높이기 위하여 소결시간을 12시간으로 길게 하였다. 성형밀도는 5.92~5.96 g/cm^{3}이였으며 소결밀도는 10.43~10.49 g/cm^{3}으로 나타났다. 또한 육안으로는 외부 크랙이 관찰되지 않았다. 따라서 성형압은 1.18 ton/cm^2 이하, 소결시간은 12시간 이상으로 소결하면 크랙이 없는 소결체를 제조할 수 있을 것으로 생각된다.

Table 9. Green density and sintered density of simulated DUPIC fuel due to compaction pressure

ID	Green Pellet				Sintered Pellet			Shrinkage
	Diameter (mm)	Length (mm)	Mass (g)	Green Density (g/cm^3)	Diameter (mm)	Length (mm)	Sintered Density (g/cm^3)	
OR 1100	15.437	11.376	13.005	6.108	12.775	9.560	10.365	42.45
OR 1200	15.466	11.307	12.995	6.118	12.808	9.454	10.370	42.66
OR 1300	15.470	11.273	12.997	6.134	12.811	9.459	10.389	42.46
OR 1400	15.462	11.148	12.996	6.209	12.824	9.434	10.398	41.79

ID : OR : simulated DUPIC fuel

1100 : 1.30 ton/cm^2

1200 : 1.42 ton/cm^2

1300 : 1.54 ton/cm^2

1400 : 1.65 ton/cm^2

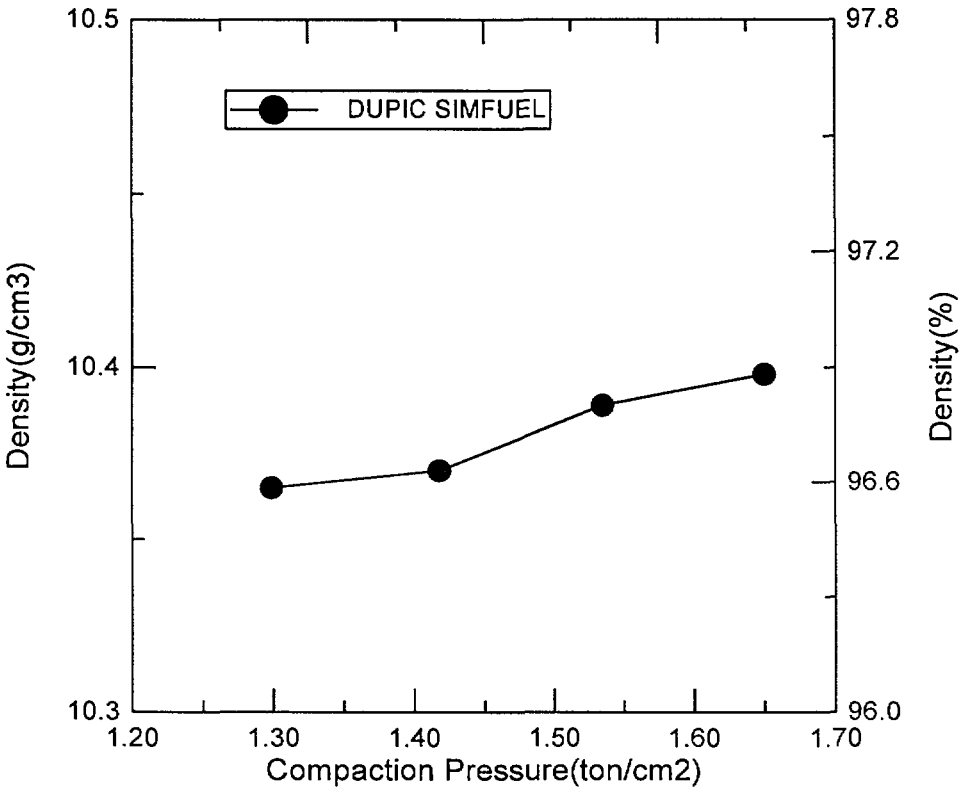
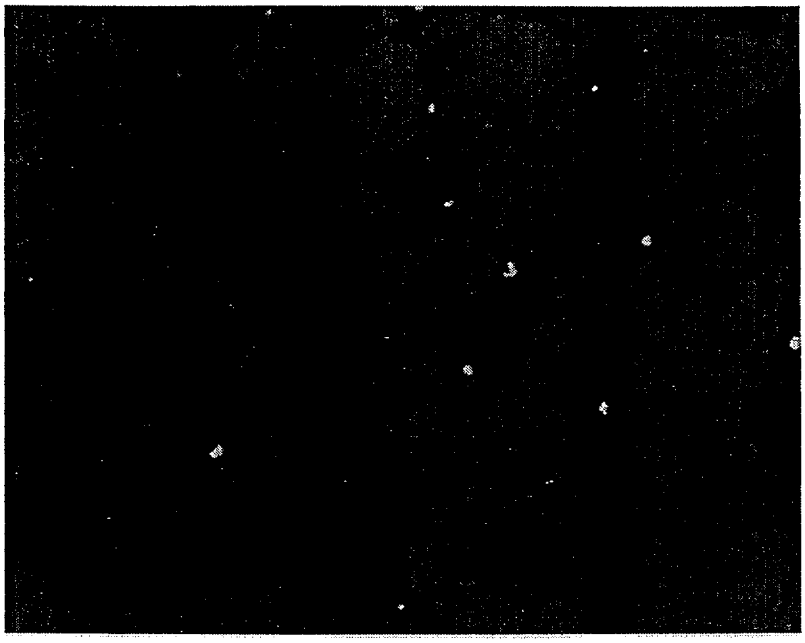
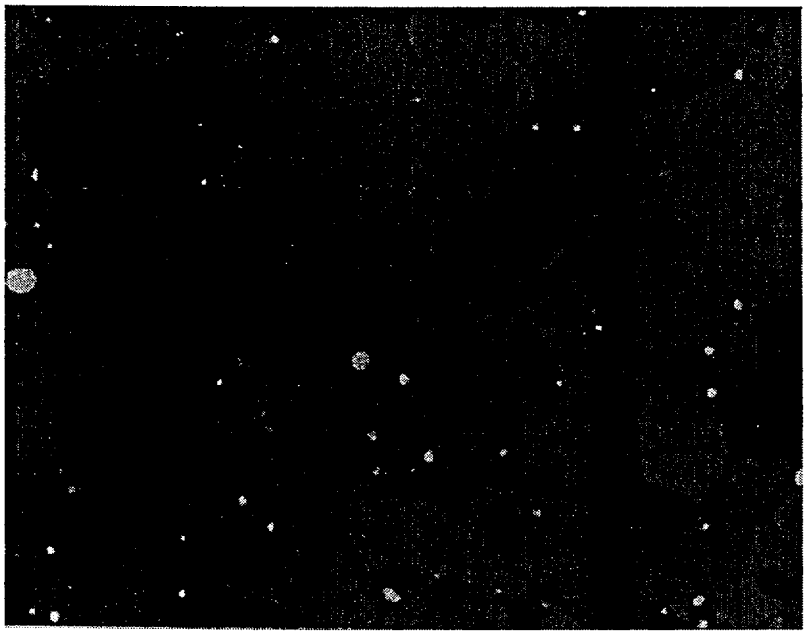


Fig. 20. Sintered density of simulated DUPIC fuel due to compaction pressure



Compaction Pressure : 1.30 ton/cm^2



Compaction Pressure : 1.54 ton/cm^2

Fig. 21. Microstructure of simulated DUPIC fuel

- 조사시험용 simulated DUPIC fuel 제조

DUPIC 핵연료의 노내 거동을 위한 자료확보와 국내기술로 제작되는 조사시험용 캡슐의 성능입증, 하나로의 조사조건, 장전, 조사후 제거, 운반등의 관련기술을 분석하기 위하여 조사시험용 모의 DUPIC 핵연료를 제조하여 연구용 원자로인 하나로에 시험조사할 예정이다. 조사시험용 모의 DUPIC 핵연료는 실제 DUPIC 핵연료의 핵분열 물질(fissile material)과 동등한 핵분열을 할 수 있게 하기 위하여 U-235의 농도가 0.71% 천연우라늄과 3.17% 농축우라늄의 혼합하여 만든 2.35%의 농축우라늄 분말을 이용하여 제조하였다. 1.2 ton/cm^2의 압력으로 성형하였으며, 약 1800℃에서 약 14시간 소결하였다. OREOX용 용기는 약 100 g 정도의 소결체를 OREOX 시켰을 때 분말이 가득차기 때문에 한번에 처리할 수 있는 용량은 무게 13 g의 소결체 7개 정도이다. 조사시험용 모의 DUPIC 핵연료는 약 10개의 소결체가 필요하므로 2회에 걸쳐를 제조하였다. 1차제조시 성형밀도는 평균 6.21 g/cm^3였으며 소결밀도는 10.25 g/cm^3였다. 2차제조시 성형밀도는 평균 6.05 g/cm^3였으며 소결밀도는 10.47 g/cm^3였다. 육안으로는 소결체 표면에 크랙이 관찰되지 않았으나, 튜브에 투입하기 위하여 연삭한 후에는 크랙이 관찰되었다. 소결체의 표면에 원주방향으로 약 1 mm에서 10 mm 길이의 크랙이 발생하였다. 소결체의 밀도는 평균 결정립크기는 4.36과 4.80μm 였다.

4. 결 론

모의 DUPIC 핵연료 제조 기술 개발에 관한 연구에서 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 분말처리에서 attrition milling 은 5회 이상 수행하는 것이 바람직하다.

2. 성형전에 조립화를 수행하는 것이 소결밀도를 향상시킨다.

3. 윤활재를 섞지 않는 것이 소결밀도를 향상시킨다.

4. 성형압을 높이는 것이 소결밀도를 향상시키나 크랙이 발생한다.

5. 크랙의 형성은 성형다이 벽면의 마찰과 냉각속도등에 기인한다.

6. 적정 소결조건은 성형압 1.2 ton/cm^2, 소결온도 1800℃, 시간 10시간 이다.

7. 이때의 소결밀도는 10.3 - 10.5 g/cm^3 결정립은 4.4 - 4.8 μm였다.

참 고 문 헌

1. Yang M.S., B.G.Kim, K.W.Song, K.K.Bae, S.S.Kim, W.K.Kim, I.H.Jung and H.S.Park, "Characteristics of DUPIC Fuel Fabrication Technology, International symposium on nuclear fuel cycle and reactor strategies: Adjusting to new realities, June 2 - 6, 1997, Vienna, Austria

2. Park H.S., "The DUPIC Fuel Cycle Alternative: Status & Perspective" Proceedings of the 10th PBNC, 1996, Kobe, Japan.

3. Lee J.S., H.S.Park, R.D.Gadsby, J.Sulliban, "Burn spent PWR fuel again in CANDU reactors by DUPIC", Global '95 Conference, Sept 11-14, 1995, Versailles.

4. Lee J.S, M.S.Yang, H.S.Park, P.Boczar, J.Sullivan, R.D.Gadsby, "The DUPIC alternative for backend fuel cycle", International symposium on nuclear fuel cycle and reactor strategies: Adjusting to new realities, June 2 - 6, 1997, Vienna, Austria

5. T. Muromura, T. Adachi, H. Takeishi, Z. Yoshida, T. Yamamoto and K. Ueno, J. Nucl. Mater., 151(1988) 318-326.
6. T. Adachi, T. Muromura, H. Takeishi and T. Yamamoto, J. Nucl. Mater., 160(1988) 81-87.
7. P.G. Lucuta, B.J.Palmer, Hj. Matzke and D.S. Hartwig, "Preparation and characterization of SIMFUEL; Simulated CANDU high-burnup nuclear fuel",Proc. Second Int. Conf. CANDU Fuel, Ed. I.J. Hasting, CNS, Toronto (1989), also AECL-10117(1989).
8. K. Une and M. Oguma, J. Nucl. Sci. Technol., 20(1983) 844.
9. H. Kleykamp, J. Nucl. Mater. 167 (1985) 49.
10. J.O. Paschoal, H. Kleykamp and F. Thummler, Z. Metallk. 74(1983) 652.
11. K. Naito, T. Tsuji, T. Matsui and A. Date, J. Nucl. Mater. 154 (1988) 3.
12. M. Ugajin, T. Shiratori and K. Shiba, J. Nucl. Mater. 84 (1979) 26.
13. M. Ugajin and K. Shiba, J. Nucl. Mater. 91 (1980) 227.
14. M. Ugajin and K. Shiba, J. Nucl. Mater. 105 (1982) 211.
15. R.A. Verrall, I.J. Hastings, P.G. Lucuta, Hj. Matzke and B.J. Palmer, "Preparation and applications of simulated high-burnup fuel", Proc.

11th Annual Conf. of the CNA, Toronto, June 3-8 1990, also AECL-10217(1990).

16. P.G. Lucuta, B.J. Palmer, Hi Marzke and D.S. Hartwig, "Preparation and characterization of SIMFUEL; Simulated CANDU higg-burnup nuclear fuel", Proc. Second Int. Conf. CANDU Fuel, Ed. I.J. Hastings, CNS, Toronto (1989), also AECL-10117(1989).
17. P.G. Lucuta, R.A. Verrall, Hj. Matzke and B.J. Palmer, J. Nucl. Mater., 178(1991) 48.
18. T. Ogawa, R.A. Verrall, M.D. Schreiter and M.O. Westcott, "Dose effect on release of ion-implanted noble gases from oxide fuel", Proc. of Int. Conference on CANDU Fuel, Chalk River, 1986 Oct. 6-8, CNS, Ed. I.J. Hastings, 543-557.
19. R.A. Verrall, Hj. Matzke, T. Ogawa and B.J. Palmer, "Iodine release and bubble formation in oxide fuels", Proc. of Int. Conference on CANDU Fuel, Chalk River, 1986 Oct. 6-8, CNS, Ed. I.J. Hastings, 558-572.
20. Hj. Matzke, I.L.F. Ray and R.A. Verrall, "Diffusion and begaviour of iodine and rubidium in UO_2 and ThO_2", IAEA, IWGFOT/27(1987) 183-196.
21. P.G. Lucuta, R.A. Verrall, Hj. Matzke and I.J. Hastings, "Theraml conductivity and gas realease from SIMFUEL", Fission gas release and fuel rod chemistry related to extended burnup, Proc. of a Committee Mtg., Pembroke, Ontario, Canada, 28 May-1 May 1992, also IAEA-TECDOC-697 (Apr. 1993).
22. P.G. Lucuta, Hj. Matzke and R.A. Verrall, J. Nucl. Mater., 223(1995) 51.
23. J. Cobos, D. Papaioannou, J. Spino, M. Coquerlle, J. Alloys and Compounds 271(1998) 610

서 지 정 보 양 식

수행기관 보고서번호	위탁기관 보고서번호	표준보고서번호	INIS 주제코드
KAERI/TR-1480/2000			

제목 / 부제

모의 DUPIC 핵연료 제조기술개발

연구책임자 및 부서명	강권호 (DUPIC핵연료기술개발팀)

연구자 및 부서명

양명승, 배기광, 문제선, 정인하, 송기찬, 박희성, 이철용, 민진영, 김동주, 김형수 (DUPIC핵연료기술개발팀)

발 행 지	대 전	발행기관	한국원자력연구소	발 행 일	2000.6.
페 이 지	p. 50	도 표	유(○), 무( )	크 기	
참고사항					
비밀여부	공개(○), 대외비( ), ___급비밀		보고서 종류	기술 보고서	
연구위탁기관			계약번호		

초록

DUPIC 핵연료의 물성 등이 일반 핵연료와 다르기 때문에 DUPIC 핵연료의 물성, 노내 거동 및 핵연료로서의 성능을 분석하기 위한 기초자료를 확보하는 것이 중요하다. 그러나 사용후 핵연료를 OREOX 공정을 거쳐 재 소결한 DUPIC 핵연료를 이용하여 열물성등을 직접 측정하는 것은 사용후 핵연료로부터 발생하는 높은 방사선량 때문에 실험실 규모의 연구에는 방사선 차폐등 많은 어려움이 따른다. 따라서 DUPIC 핵연료의 물성을 측정하기 위하여 DUPIC 핵연료를 모사한 모의 DUPIC 핵연료를 제조하여야 한다. 본 보고서에서는 모의 경수로 사용후 핵연료를 이용하여 모의 DUPIC 핵연료를 제조하기 위한 분말처리, OREOX, 성형 및 소결공정에 관하여 기술하였다. 모의 DUPIC 핵연료를 제조하기 위하여 모의 경수로 사용후 핵연료를 3회 OREOX 후 5회의 attrition milling을 거친 분말을 1.3~1.65 ton/cm^2의 압력으로 성형한다. 약 1800℃에서 10시간 소결하여 소결밀도 10.37~10.50 g/cm^3의 소결체를 만들었다.

주제명

모의 DUPIC핵연료, OREOX, 소결.

BIBLIOGRAPHIC INFORMATION SHEET

Performing Org. Report No.	Sponsoring Org. Report No.	Standard Report No.	INIS Subject No.
KAERI/TR-1480/2000			

Title/Subtitle

Development of Fabrication of Simualated DUPIC Fuel

Project Manager and Dept.	KweonHo Kang(DUPIC Fuel irradiation Test and Performance Evaluation)

Researcher and Dept.

M.S. Yang, K.K. Bae, J.S. Moon, I.H. Jung, K.C. Song, H.S. Park, C.Y. Lee, J.Y. Min, D.J. Kim, H.S. Kim(DUPIC)

Pub. Place	Taejeon	Pub. Org.	KAERI	Pub. Date	Jan. 2000
Page	p. 30	Fig. and Tab.	Yes(○), No( )	Size	
Note					

Classified	Open(○), Outside( ), __Class	Report Type	Technical Report
Sponsoring Org.		Contract No.	

Abstract

It is important to get basic data to analysis physical properties, behavior in reactor and performance of the DUPIC fuel because physical properties of the DUPIC fuel is different from the commercial UO_2 fuel. But what directly measures physical properties et al. of DUPIC fuel being resinterred simulated spent fuel through OREOX process is very difficult in laboratory owing to its high level radiation. Then fabrication of simulated DUPIC fuel is needed to measure its properties. In this study, processes on powder treatment, OREOX, compaction and sintering to fabricate simulated DUPIC fuel using simulated spent fuel are discribed. To fabricate simulated DUPIC fuel, the powder from 3 times OREOX and 5 times attrition milling simulated spent fuel is compacted with 1.3 ton/cm^2. Pellets are sintered in 100% H_2 atmosphere over 10 h at 1800℃. Sintered densities of pellets are 10.2~10.5 g/cm^3.

Subject Key Words

simulated DUPIC Fuel, OREOC, Sintering