

## 핵연료 소결체의 최적 밀도 평가 연구

김용수, 이동욱

한양대학교

김석봉, 송중희, 이종권, 최규환

한국원전연료주식회사

김인환

한국원자력안전기술원

### 요 약

핵연료의 노내 성능에 영향을 미치는 주요 제조 인자중의 하나인 소결체 밀도의 최적화 연구를 국내 제조 소결체에 대해 소결체 밀도와 수분 함유량 및 봉내압 평가를 통해 수행하였다. 연구 결과 원자로내 연소에 따른 봉내압 증가를 줄이기 위해서는 이론밀도 96% 이하의 밀도가 바람직하나 소결체내의 과다한 수분 함량을 피하기 위해서는 95% 이상의 밀도가 필요한 것으로 나타나 핵연료 소결체의 밀도는 이론밀도의 95% - 96.2%가 최적값으로 평가되었다.

### 1. 서 론

핵연료가 원자로내에서 연소되면서 발생하는 핵분열 생성물들은 일반적으로 핵연료 소결체내에 산화물 혹은 금속원자 상태로 남아 있게 되나 이들중 휘발성/기체상 생성물들은 연소가 진행됨에 따라 소결체 기지내 원자확산 혹은 기포이동을 통해 소결체를 빠져 나와 봉내에 축적되어 핵연료 봉내압을 증가시키게 된다. 특히, 이들 기체상 핵분열 생성물은 대개 Xe 이나 Kr 등과 같은 열전도도가 극히 낮은 비활성 기체들로 이들의 봉내 축적은 소결체와 피복관 사이의 열전달을 저하시키고 또한 증가된 봉내압은 피복관 내부의 응력으로 작용하게 된다. 따라서 가능한 이들 기체가 핵연료 소결체 밖으로 방출되지 않도록 기지내에 잡아두기 위한 기공(pore)을 소결체 기지내에 만들게 되는데 이를 위해 통상 제조시 소결체의 밀도를 이론밀도보다 4-5% 낮도록 조절하고 있다.

그러나 밀도가 낮아지게 되면 소결체 내부에 수분의 함유량이 증가하게 되고 이들 수분이 원자로 운전중 연료봉 내부에서 피복관과 이산화우라늄과 산화반응을 일으켜 다량의 수소를 발생시키게 되며 이때 발생한 다량의 수소가 피복관에 급격

히 대량 침투해 피복판의 수소화 파손을 일으킬 수 있다. 따라서 핵연료 소결체 제조시 모든 제작자는 이러한 내부 수소화 현상 방지를 위해 수소 함유량을 설계기준 이하(0.6ppm)로 철저히 조절하고 있다. 수소 함유량을 낮추기 위한 일반적인 방법은 소결체의 밀도를 높이는 것이다. 일반적으로 소결밀도가 낮을수록 소결체 내부의 기공중 개기공의 비율이 높아지고 이들 개기공의 표면에 수분이 흡착함으로써 수분 함유량이 높아지게 된다고 알려져 있다.

그러므로 기체상 핵분열의 방출을 억제하기 위한 소결체내 기공의 마련과 수분 함유량을 줄이기 위한 기공의 축소는 서로 상충하게 되어 어떤 최적화된 밀도를 도출하는 것이 필요하게 된다. 실제 많은 해외 핵연료 공급자들의 경우 대개 최적화된 밀도를 이론밀도의 95 - 96%로 설정하고 있다.

본 연구에서는 국내에서 제조하고 있는 핵연료 소결체에 대한 밀도와 수분 함유량의 관계와 이들의 노내 성능 평가를 통해 가장 최적화된 국산 소결체의 밀도를 도출하였다.

## 2. 수분 함유량 측정 및 노내 성능 평가

### 2.1 소결체 밀도에 따른 수분 함유량 측정

소결체 밀도에 따른 내부 수분 함유량을 평가하기 위해 다음의 표와 같이 저밀도부터 고밀도까지 여러 밀도의 소결체를 각각 20 개씩 표본 추출해 LECO사의 수소/수분 분석기를 이용하여 수소 함유량을 측정하였다.[1,2] 본 실험을 수행하면서 최종 소결체 장입전 실시하는 건조과정의 영향을 확인하기 위해 건조로 온도 영향도 함께 검토하였다.

Group	Density	Drying Temperature		Sample No.
		150 °C	180 °C	
1	10.30	o		20
2			o	20
3	10.33	o		20
4	10.34	o		20
5	10.36	o		20
6	10.38	o		20
7	10.40	o		20
8			o	20
9		o		20
10	10.42	o		20
11	10.45	o		20
12	10.50	o		20

상기 수분 함유량 측정 실험과는 별도로 소결체 밀도에 따른 개기공의 함유 비율 측정자료를 검토하였다.[3]

## 2.2 소결체의 밀도가 노내 성능에 미치는 영향 평가

소결체내 기공의 변화에 따른 봉내압 및 핵분열 생성물 방출비를 평가하기 위해 국내의 전형적인 경수로 핵연료봉 입력자료[5]와 GAPCON-THERMAL-2 Revision 2(GT2R2) 핵연료 성능코드를 사용하여 핵연료 성능 평가를 수행하였다. 먼저 기공을 변화시키면서(0 - 7%) 즉, 소결체 밀도를 증가시켜 모사하면서 핵분열 생성물 방출비를 검토하였고 이에 따른 봉내압 증가를 평가하였다. 핵분열 기체 방출 모델로는 modified ANS5.4 모델을 사용하였다.

## 3. 결과 및 논의

실제 소결체내의 수분을 직접 측정하는 것은 용이하지 못하므로 모든 핵연료 제조자들은 불활성 기체 용융법(inert gas fusion) [6]에 의해 수소의 양을 측정하고 이 수소의 양을 이용하여 등가수분의 양을 평가한다. 따라서 본 연구에서도 측정된 결과는 등가수분의 양이 아닌 수소의 함유량이며 이들 측정결과는 다음의 통계적 방법으로 처리하였다.

$$\text{upper confidence limit (UCL)} = \bar{X} + ts / \sqrt{n}$$

where  $\bar{X}$  : 평균값

$$s : \text{표준편차} \quad s^2 = \frac{1}{n} \sum_{X_i=1}^n (X_i - \bar{X})^2$$

n : 표본수

t : t-분포의 임계값

위와같은 방법으로 평가된 여러 밀도 소결체내 UCL 수소 함유량의 측정결과를 그림 1에 도식하였다. 이 그림에서 소결체의 밀도가 증가할수록 소결체 내부의 수소 함유량은 거의 지수적으로 감소하며 밀도가 10.34 g/cm<sup>3</sup> (이론밀도의 94.3%) 이상이면 설계 기준치인 0.6 ppm 이하로 떨어진다는 것을 알 수 있다. 또한 밀도가 10.45 g/cm<sup>3</sup> (이론밀도의 95.3%) 이상의 고밀도에서는 수소 함유량이 0.1ppm 정도에 머무르는 것으로 밝혀졌다. 또한 소결체의 연료봉 장입전 실시하는 건조과정의 온도는 수분 함유량에 영향이 없는 것으로 나타났다.

핵연료 소결체내에 기공의 양이 증가하면 일단 방출되는 핵분열 생성물을 가두어 둘 공간이 늘어 봉내압 증가를 둔화시킬 수 있으나, 이들 기공은 소결체의 열전도도를 떨어뜨려 원자로 운전중 소결체 내부 온도를 증가시키게 되어 결국 더 많은 핵분열 생성물의 방출을 유발시킬 수도 있다. 따라서 이러한 모든 영향을 고려해 소결체내의 기공분율에 따른 봉내압의 변화를 평가하였고 그 결과를 그림 2에 나타내었다. 이 그림은 소결체의 밀도가 낮을수록, 즉 소결체의 기공이 증가할수록 봉내압은 낮아진다는 것을 보여 주고 있다. 특히 기공분율이 5%를 넘어서면 기공의

역할이 두드러진 것을 알 수 있다.

그러나 기공의 분율이 작을때는 (4%이하) 기공의 기체상 핵분열 생성물의 임시 저장 역할이 소결체의 열전도도 저하로 인한 핵분열 생성물의 방출 증가와 상쇄되어 큰 역할을 하지 못하는 것으로 드러났다.[그림 3] 그림 4의 소결체 밀도에 따른 개기공 비율 측정 결과를 그림 1의 수소농도 변화와 비교해보면 기공증가에 따라 발생하는 소결체내 개기공이 소결체 수분 함유의 주요 원인이라는 것을 분명하게 알 수 있다. 특히, 소결체내 수소농도가 거의 0.1ppm 으로 saturate 되는 밀도인  $10.45\text{g/cm}^3$  에서 부터 개기공이 거의 사라지기 시작하고 있다.

#### 4. 결 론

소결체 밀도는 수분 함유량을 설계 기준치 이하로 낮추기 위해서는 적어도 이론밀도의 95% 이상을 유지해야 하나 96% 이상의 고밀도 소결체는 핵분열 생성물의 방출과 이에 따른 봉내압 증가 등 원자로내 성능상 바람직하지 않는 것으로 드러났다. 본 연구를 통해 핵연료 소결체의 최적밀도는 95% - 96.2% 로 평가되었다. 또한 기공증가에 따라 발생하는 소결체내 개기공이 소결체내 수분 함유의 주요 원인이라는 것이 밝혀졌다.

#### 참고문헌

1. Process Qualification Test Program, QTP-033, 한국원전연료주식회사 (1993)
2. Process Qualification Test Report, QTR-033, 한국원전연료주식회사 (1993)
3. 메모 FD/RD - 920022M, 한국원전연료주식회사 (1992. 6. 16)
4. M. E. Cunningham and C. E. Beyer, "GT2R2 : An updated version of GAPCON-THERMAL", NUREG/CR-3907, PNL-5178 (1984)
5. 김용수, "연소도에 따른 사용후 핵연료내 기체상/휘발성 핵분열 생성물 방출량과 봉내압의 평가 및 응력파괴 분석", 한국원자력연구소 (1996)
6. ASTM C-696-80, Standard Methods for Chemical, Mass Spectrometric, and Spectrochemical Analysis of Nuclear-Grade Uranium Dioxide Powders and Pellets

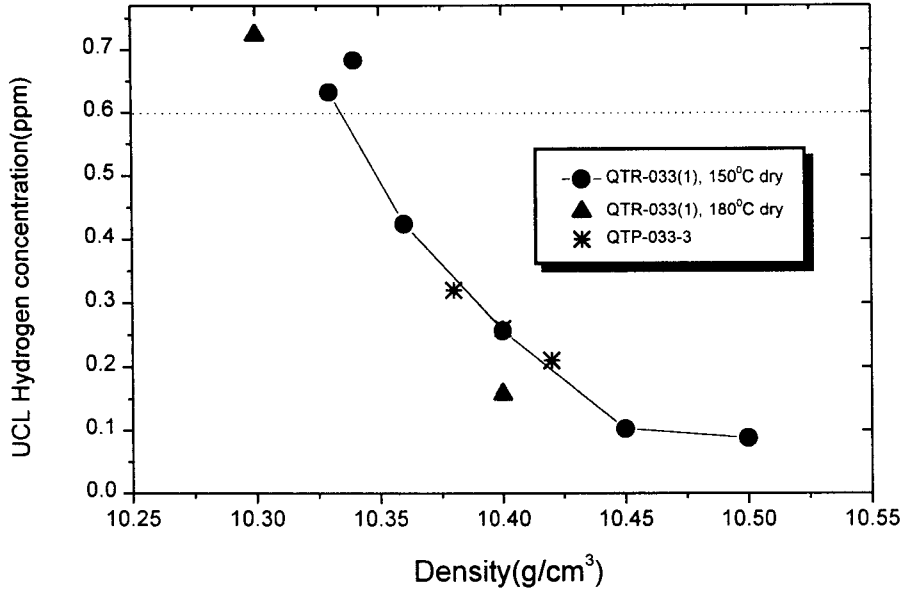


그림 1. 소결체 밀도에 따른 수소농도 변화

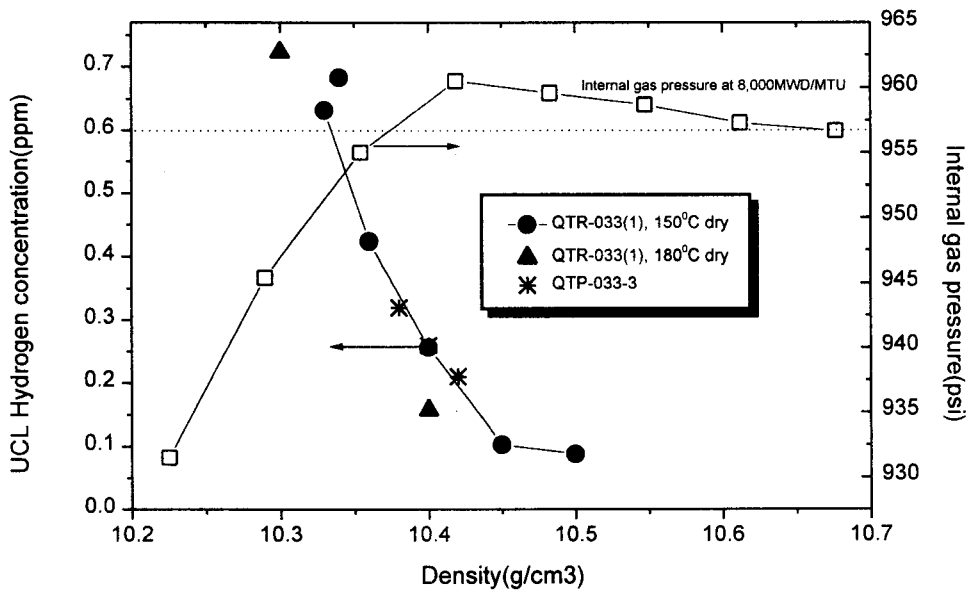


그림 2. 소결체 밀도에 따른 수소농도와 봉내압 변화

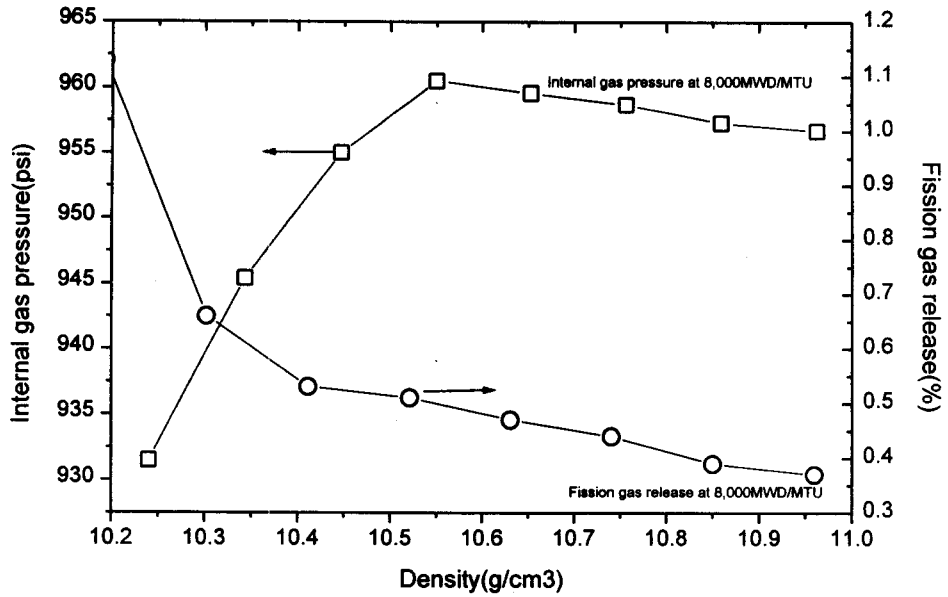


그림 3. 소결체 밀도에 따른 봉내압 및 핵분열 생성물 방출비

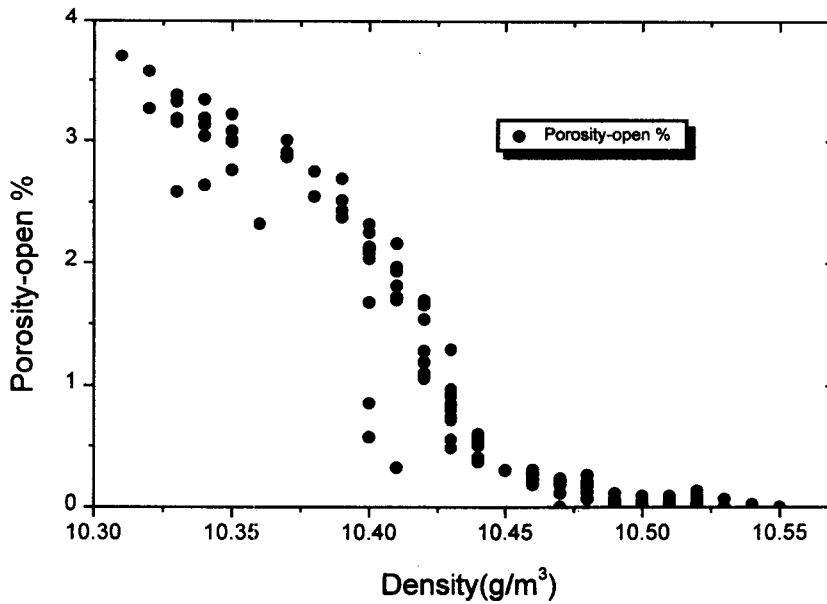


그림 4. 소결체 밀도에 따른 개기공 비율