'98 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

고속로용 U-10Zr 금속핵연료 노내 조사시험 : I. 핵연료시편 제조 및 노외 특성시험

이찬복, 이병호, 황완, 손동성
한국원자력연구소

L. Zabudko
IPPE

요 약

KALIMER 고속로의 기본 핵연료인 U-10Zr 핵연료봉의 노내 성능시험을 위해, 러시아의 BR-10 연구용 고속원자로에서 핵연료노내조사 Program이 1997년부터 수행되고 있다. 1 차년도에는 핵연료 시편의 설계 및 제조와 금속합금 핵연료의 균질도, 밀도, 열전도도 등의 노외 특성 시험이 수행되었다. U-10Zr 핵연료심은 Arc 용해로 제조되었는데, 합금의 구성 원소들은 비교적 균일하게 분포되었다. 핵연료 시편은 2 개가 제작되었는데, BR-10 원자로에서 각각 연소도 1.08 % 및 2.15 %까지 연소된후, 조사후 검사가 수행될 것이다. 금속핵연료는 대개 낮은 연소도에서 급격한 변화를 보이기 때문에, 본 핵연료 노내조사시험 Program의 결과는 금속핵연료봉의 성능해석 모델 개발에 활용될수 있을 것이다.

1. 개요

KAERI에서 개발중인 KALIMER 고속원자로[1]의 기본 핵연료인 U-10Zr 핵연료의 성능 시험을 위해 러시아 IPPE 연구소의 연구용고속로인 BR-10에서 핵연료 조사시험을 수행하고 있다. 조사시험의 목적은 U-10Zr 핵연료의 노내 성능 검증 및 핵연료성능 모델 개발을 위한 노내 성능 자료 생산이다. U-10Zr 핵연료의 설계는 미국 ANL에서 개발된 IFR 원자로[2]의 U-Pu-Zr 핵연료 설계와 유사하다. 핵연료심과 피복관의 사이에 충분한 갭을 주어서 연소에 따른 핵연료심의 팽윤으로 인한 핵연료심과 피복관의 기계적 상호작용을 감소시켰으며, 열전달 향상을 위해 핵연료 갭에는 Sodium을 채웠다. 방출되는 핵분열기체를 수용하기 위해 연료봉의 상부에 충분한 플레넘 공간을 주었다.

BR-10 원자로에서의 노내조사시험 Program은 1997년에 착수되었는데, 현재까지 핵연료 시편의 설계와 제조, 그리고 핵연료심의 노외특성시험이 완료되었으며, 핵연료시편의 노내조사조건에서의 출력 및 온도변화 등에 대한 예비분석이 수행되었다. 핵연료 시편은 2 개가 제조되어 연소될 예정인데, 하나는 1 년동안 연소도 1.08 %까지 연소되고, 다른 것은 2 년동안 연소도 2.15 %까지 연소된 후 각각 조사후 시험이 수행될 것이다.

금속핵연료의 노내 성능중 가장 중요한 변수는 핵분열기체 방출 및 팽윤이다. 금속합금 핵연료의 경우 산화물 핵연료 보다 원소의 확산 속도가 크고, 핵분열기체에 의한 기포의 생성이 결정립 경계면 외에도 상경계면에서도 쉽게 일어나며, 결정립 경계면 및 상경계면은 핵연료가 연소됨에 따라 온도에 의존적인 속도로 이동하는 현상이 있어서, 산화물핵연료 보다 복잡하다. 그림 1 및 2는 여러 금속합금 핵연료의 연소도 증가에 따른 핵분열기체 방출 및 길이성장을 보여주는데, 핵연료심의 조성 및 미세구조의 차이에 따른 영향은 크지 않고, 대개 연소도 2 ~ 4 %까지 급격한 변화를 보이다가 그 후는 안정적인 변화를 보임을 알수 있다.

따라서 본 조사시험은 낮은 연소도에서의 핵연료 거동, 즉 핵연료심 내의 결정립경계면 및 상경계면에서의 핵분열기체의 기포 생성 및 성장, 기포의 상호 연결, 핵분열기체 방출, 기포에 의한 핵연료 팽윤 등을 분석하는데 적절하다고 할수 있다. 본 논문은 현재까지 수행된 결과를 정리 분석하고 앞으로의 계획을 기술하였다.

2. 핵연료 시편 제조 및 예비 특성화

핵연료심 제조

U-10Zr 합금의 주괴(Ingot)는 90 wt.%의 우라늄과 10 wt.%의 지르코늄을 혼합하여 Arc 용해를 통해 만든다. 용해는 구리 도가니에서 진행되며, 전극으로는 텅스텐이 사용된다. 합금의 균질성을 위해 용해를 7 ~ 8 번 반복한다. 160 ~ 165 g의 주괴를 40 ~ 65 g 으로 3 등분하여 재용해하여 수정관에 주입한후 냉각시켜 핵연료 펠릿을 만든다. 제조된 핵연료 펠릿의 길이는 40 cm 이하이고 외경은 10 mm 인데, 기계가공을 통해 외경을 8.2 mm로 만든다. 이 과정에서 펠릿 가장자리에 있는 핵연료와 수정관의 반응층(두께 0.25 ~ 0.3 mm 이하)이 제거된다.

제조된 핵연료합금 주괴에 대해 합금 구성 원소의 균질성, 열전도도 및 밀도 등이 측정되었다. 그림 3은 U-10Zr 합금의 미세구조를 보여준다. 검은색은 α-U과 γ-Zr이 혼합되어 있는 상태이고 밝은 색은 δ상의 UZr_2 인데, 검은 부분이 전체의 70 %를 차지한다. 그림 3(b)에는 천천히 냉각된 주괴의 일반적인 특징인 Dendrite 석출도 보이는데, 조성은 UZr_2이다. 그림 4 및 5는 EPMA(Electron Probe Micro-Analysis)를 통한 Zr의 분포를 보여 준다. 그림 4에서 Zr 분포의 Peak는 UZr_2 상 때문이며, 그림5 에서와 같이 Zr의 전반적인 분포는 ± 0.5 % 이내로써 비교적 균일하게 분포하고 있음을 알수 있다.

U-10Zr 합금의 밀도는 정밀 저울을 사용하여 공기중 및 수중에서의 무게 차이를 통해 측정하는데, 오차는 ± 0.5 %이다. 표 1은 주괴별로 측정된 밀도의 변화를 보여 주는데, 주괴 내에서의 밀도차는 크지 않음을 알수 있다. 그림 6은 U-10Zr 합금의 기공도(9 % 및 12.5 %) 및 온도에 따른 열전도도 변화를 보여 주는데, 온도 증가 및 기공도 감소에 따라 열전도도는 증가하였다. U-10Zr 합금의 열전도도는 Plate Method법으로 측정되었으며, 측정 오차는 8 % 이다. U-10Zr 합금의 Microhardness는 400 ~ 480 Kg/mm^2로 측정되었다.

핵연료시편 제조

그림 7은 BR-10 원자로에 장전되는 핵연료시편 집합체의 개략도이다. 핵연료봉을 핵연료집합체의 틀에 넣어서 제조한후 BR-10 노심에 장전한다. 표 2에는 시험용 연료봉과 KALIMER용 연료봉의 특성이 비교되어 있다. 시편 연료봉에는 주괴가 서로 달라 밀도, 직경 및 길이가 서로 다른 9 개의 펠릿이 장전되는데, 펠릿의 길이도 11 ~ 37 cm로 다양하다. 핵연료심 및 연료봉의 외경은 각각 7.91 ~ 8.25 mm 및 10 mm로써 KALIMER 용 연료봉[5]의 5.5 및 7.4 mm 보다 크며, 핵연료의 Smear 밀도는 77 ~ 84 %로써 KALIMER 용 연료봉의 75 %보다 조금 크다. 연료봉의 피복관으로는 러시아에서 제조된 고속로용 피복관이 사용되는데, 표 3의 조성과 같은 Austenitic Cr18-Ni10-Ti S.S.이 사용된다.

시편연료봉의 조립 순서는 다음과 같다. 피복관과 하부 봉단마개를 용접한후, 하부 반사체와 핵연료 펠릿, 그리고 플레넘 구조물을 넣은후 Sodium을 연료봉 내부로 주입시킨다. 그후 상부 봉단마개를 용접하여 연료봉을 밀봉시킨다. 그리고 피복관 외벽에 선재(Wire)를 감는다. 핵연료집합체는 Cr18-Ni10-Ti S.S. 강으로 제조된다. Sodium 냉각재는 그림 7에서와 같이 하부의 유로 채널을 통해 유입되어 핵연료봉으로부터 열을 흡수하여 상부에 있는 3 개의 유로구멍 밖으로 나온다.

핵연료 조사조건

BR-10은 러시아 IPPE 연구소의 연구용 고속로로써, 열출력은 8 MWth이다. 핵연료로는 질화우라늄(UN)을 사용하는데, 노심에는 101 개의 핵연료집합체가 장전된다. 원자로의 운영 주기는 2 개월 운전후 1 개월 정지이다. 노심의 크기는 직경이 0.315 m, 높이가 0.4 m이다. 냉각재로는 Sodium을 사용하는데, 노심의 입구 및 출구 온도는 각각 330 ℃ 및 445 ℃이다.

핵연료시편은 BR-10 원자로의 중심에서 0.153 m에 위치한 Cell에 장전되는데, 그 곳에서의 속중성자속의 크기는 전출력시 4×10^{14} $n/cm^2.s$(E > 0.1 Mev)이다. 두 개의 핵연료 시편 중 1 개는 1 년동안 150 EPFD(Effective Full Power Day) 연소된후 방출되고, 다른 하나는 2 년동안 300 EPFD 연소될 예정인데, 핵연료의 연소도는 각각 1.08 % 및 2.15 %가 된다. 핵연료의 선출력은 491 ~ 550 w/cm이며, 축방향의 출력분포는 아래의 식과 같이 변한다.

$$f(x) = 1.16 - 0.152\,|x| - 10.89\,x^2$$

윗 식에서 x는 노심의 가운데면에서의 거리(m)를 나타낸다.

Sodium 냉각재의 입출구 온도는 331 ℃ 및 362 ℃이다. 핵연료 중심 온도는 연소도에 따라 변하는 핵연료의 열전도도와 핵연료 선출력의 크기에 따라 결정되는데, 주기초에는 최대 576 ℃, 주기말에는 핵연료심의 열전도도가 반으로 감소한다고 가정할시 최대 726 ℃까지 변한다. 핵연료시편 집합체 내로 흐르는 Sodium 냉각재의 유량은 1.343 m^3/hr, 속도는 10.97 m/s이다.

3. 앞으로의 계획

노내 조사조건 Monitoring

핵연료시편의 연소 이력을 알기 위해 다음과 같은 변수가 측정 혹은 계산된다. 중성자속은 원자로의 주기초 및 주기말에서 핵연료시편이 장전되는 노심의 위치(Cell)에서 측정된다. 측정은 낮은 원자로 출력에서 이루어지며, 정상 출력일 때의 값은 출력의 크기 증가를 보정해주어서 구한다. 경수로와는 달리 고속로에서는 원자로의 운전중에 중성자속을 직접 측정하는 것은 매우 어려우며, 핵연료의 연소 및 증식이 동시에 진행되기 때문에 원자로 운전중 핵연료의 출력 변화는 대개 5 % 이내이다.

핵연료시편 집합체 내로의 Sodium 냉각재 유량은 직접 측정되지는 않고, 노심 전체의 Sodium 유량을 5 % 이내의 정확도로 측정한 값과 핵연료시편집합체의 압력강하치를 분석하여 구한다. 핵연료시편 집합체의 압력강하치는 노외 수력시험을 통해 정확도 1 % 이내에서 측정된다. 냉각재의 온도는 노심의 입구 및 출구에서 측정된다. BR-10 원자로의 구조상 핵연료시편집합체의 출구에서의 냉각재 온도는 측정할수 없기 때문에 핵연료시편 집합체의 출력으로부터 추정할수 있다.

조사후 시험

핵연료의 조사후 시험는 조사 Program의 목적을 달성하는 것으로 매우 중요하다. 조사후 검사는 비파괴 및 파괴검사로 분류할수 있는데, 표 4에는 수행될 조사후 검사 항목과 검사기기가 요약되어 있다. 비파괴 검사로는 육안 검사와 Profilometry, 감마스캐닝 등이 있는데, 연료봉의 이상유무, 연료봉의 직경, 그리고 핵연료의 축방향 연소도 분포 등이 측정된다. 파괴검사로는 핵분열기체의 분석, 핵연료 밀도와 기공 및 개기공도 측정, 핵연료의 미세구조 분석을 통한 기포 및 기공의 크기 분포, 결정립 크기변화 등을 측정한다.

한편 조사후 핵연료심에 대한 EPMA 검사를 통한 Sodium 침투, Zr 및 U의 재분포, 핵분열생성물 분포, 피복관 구성 원소의 핵연료심으로의 확산과 조사된 핵연료의 열전도도 등은 핵연료 성능에서 매우 중요한 인자이기 때문에 검사 항목에 추가시킬 예정이다. 또한 조사된 핵연료시편에 대해 핫셀의 Furnace에서 가열시험을 하여, 핵분열기체 기포의 성장 Kinetics와 핵분열기체 방출, 핵연료 연소도에 따른 잔류 핵분열기체의 량 등을 측정하고, 핵연료심과 피복관의 화학반응에 의한 공융 시험을 통해 핵연료심과 피복관의 양립성도 시험할수 있을 것이다.

4. 결론

KALIMER 고속로용 U-10Zr 핵연료봉의 노내 성능시험을 위해 러시아의 BR-10 원자로에서 핵연료노내조사 Program이 1997년부터 수행되고 있다. 1 차년도에는 핵연료 시편의 설계 및 제조와 노외 특성 시험이 수행되었다. Arc 용해로 제조된 U-10Zr 핵연료심은 α-U 및 δ-UZr_2 상이 비교적 균일하게 혼합 분포되었다. 핵연료 시편은 2 개가 제작되었는데, BR-10 원자로에서 각각 연소도 1.08 및 2.15 %까지 연소된후, 조사후 검사가 수행될 것이다. 본 저연소도 핵연료 노내조사 시험 Program의 결과는 낮은 연소도에서 급격한 변화를 보이는 특성을 지닌 금속핵연료봉의 성능해석 코드 개발에 활용될수 있을 것이다.

5. 참고문헌

[1] 김영철 외, 액체금속로 요소기술개발, KAERI/RR-1713/96, KAERI, 1997.
[2] C.E. Till and Y.I. Chang, "The integral fast reactor", Advances in Nuclear Science and Technology, 20, 127, 1988.
[3] G.L. Hofman, et al, "Metallic fast reactor fuels", Progress in Nuclear Energy, vol. 31, No.1/2, pp.83-110, 1997.
[4] R.G. Pahl, et al., "Irradiation behavior of metallic fast reactor fuels", J. of Nucl. Mats., 188, pp.3-9, 1992.
[5] 황완, 남철, KALIMER 핵연료 타당성 평가, KAERI/TR-907, KAERI, 1997.

표 1. 시편 연료봉과 KALIMER 연료봉의 제원 비교

변 수	시편 연료봉 #1M	시편 연료봉 #2M	KALIMER 연료봉
핵연료심 외경(mm)	7.91 ~ 8.25	8.11 ~ 8.21	5.5
핵연료 Diametral 갭(mm)	0.75 ~ 1.09	0.79 ~ 0.89	0.84
피복관 외경(mm)	10.0 ± 0.07	10.0 ± 0.07	7.4
피복관 두께(mm)	0.5 ± 0.07	0.5 ± 0.07	0.53
핵연료심 Smear 밀도(%)	77 ~ 84	81 ~ 83	75
핵연료심 길이(mm)	203.33	202.85	1000
플레넘 길이(mm)	188	188	1500
U-10Zr 밀도(g/cm^3)	14.84 ~ 16.81	15.24 ~ 16.78	-

표 2. U-10Zr 주괴의 밀도

Heat #	1	2	3	4
밀도(g/cm^3)	16.113±0.255	15.800±0.342	15.283±0.140	15.595±0.007

표 3. Cr18-Ni10-Ti S.S의 조성

조성	C	Si	Mn	S	P	Cr	Ni	Ti
%	0.08	0.52	1.50	0.004	0.027	17.56	10.55	0.49

표 4. 조사후 검사 항목 및 검사 방법

	검사 항목	검사 기기	정확성
비파괴 검사	연료봉 이상 유무	Visual Examination	-
	피복관 변형률	Profilometry	± 10 μm
	피복관 길이 성장	Sliding Caliper	± 0.1 mm
	핵연료심 길이성장, 축방향 연소도 분포	감마스캐닝	-
파괴 검사	핵분열기체 방출량 및 조성	Gas Chromatography	± 0.1 cm^3
	핵연료 밀도	CCl_4 Immersion	± 0.35 %
	핵연료심 직경	OM*	-
	핵연료 미세구조	OM, SEM**	-
	.Restructuring, Tearing		
	.Pore 및 Bubble 크기 분포		
	.결정립 크기 분포		
	피복관 팽윤, 변형률, Wastage	EPMA***, OM	-
	핵연료/피복관 화학반응	EPMA, OM	-

(*) Optical Microscope
(**) Scanning Electron Microscope
(***) Electron Probe Micro-Analysis

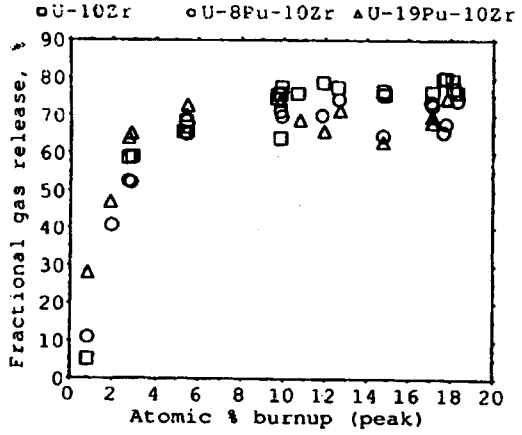

그림 1. 핵연료연소도에 따른 핵분열기체 방출률[4]

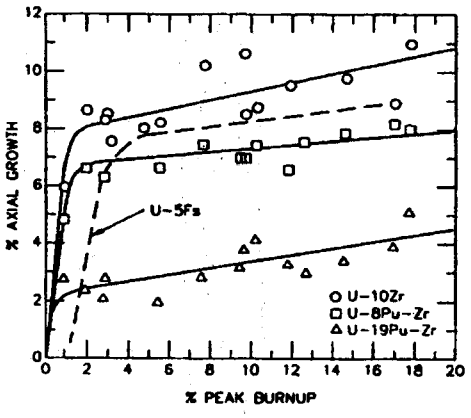

그림 2. 핵연료연소도에 따른 핵연료의 길이 성장[3]

그림 3. U-10Zr 합금의 미세구조

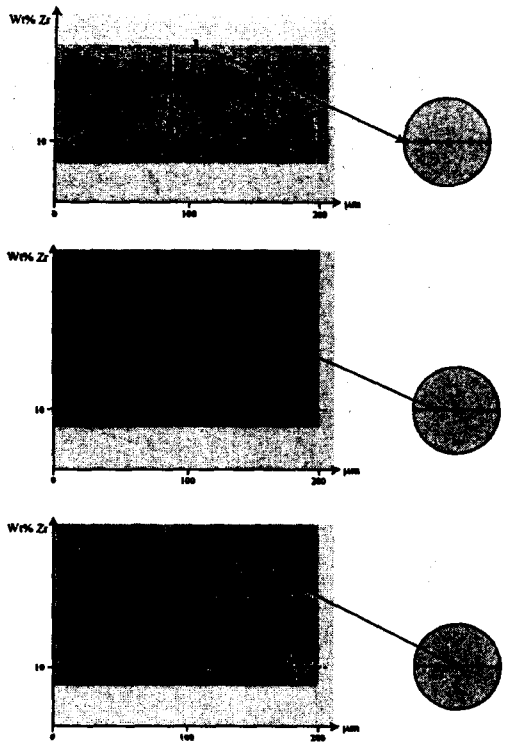

그림 4. U-10Zr 합금펠릿의 반경방향 Zr 원소 분포(EPMA 스캐닝 직경 3 μm)

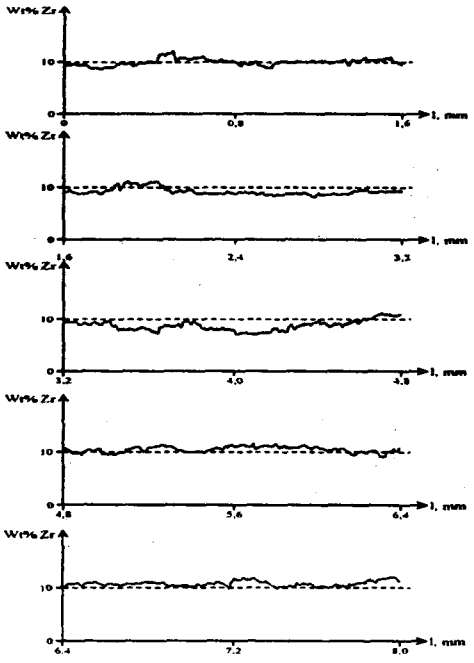

그림 5. U-10Zr 합금펠릿의 반경방향 Zr 원소 분포(EPMA 스캐닝 직경 120 μm)

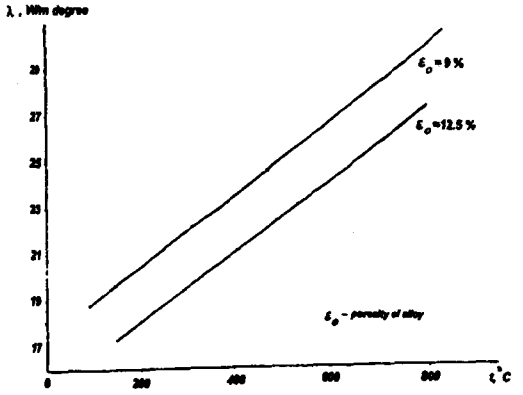

그림 6. U-10Zr 합금의 온도 및 기공도에 따른 열전도도

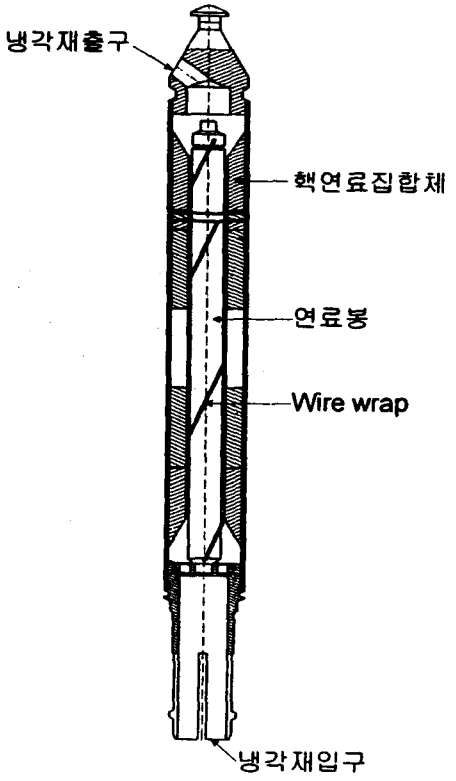

그림 7. 핵연료시편 집합체 개략도