

환형 형태의 가압경수로 사용후핵연료의 질산 용해율 평가

권형문, 서항석, 손영준, 김도식
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 diango@kaeri.re.kr

1. 서론

가압경수로 사용후핵연료 피복관의 기계시험을 수행하기 위해서는 피복관 내부의 UO₂ 소결체 제거가 선행되어야 한다. 그러나 연소도가 증가함에 따라 소결체-피복관 사이에 화학적 반응층이 형성되어 물리적으로 소결체를 제거하기는 쉽지 않다. 현재, 한국원자력연구원 조사후연료시험시설에서는 소결체 내부를 친공하고 피복관과 결합되어 있는 잔여 소결체를 질산으로 용해하는 방법을 사용하고 있다[1]. 본 연구에서는 소결체 내부를 친공한 형태인 환형 소결체의 용해 시간을 평가할 수 있는 소결체 표면적 평가식을 유도하고, 친공하지 않은 원통 형태 핵연료와 용해율을 비교 평가하였다.

2. 본론

2.1 용해 표면적

소결체 표면적당 용해율은 일정하다고 가정하면, 용해율 계산에 있어, 유효 용해 표면적을 평가하는 것은 매우 중요하다. 다음 식은 환형 형태의 소결체 표면적을 유도한 식이다. 피복관과 결합되어 있는 반응층은 표면적에서 제외하였다.

$$a_1 = \frac{R_0^2}{2} \sin^{-1} \left(\frac{x}{R_0} \right) \quad (1)$$

$$a_2 = \frac{x}{2} \sqrt{R_0^2 - x^2} \quad (2)$$

$$a_3 = \left(\frac{\pi}{4} - \sin^{-1} \left(\frac{x}{R_0 - T_0 + t} \right) \right) (R_0 - T_0 + t)^2 - x \sqrt{(R_0 - T_0 + t)^2 - x^2} + x^2 \quad (3)$$

$$a_4 = x^2 \quad (4)$$

$$a_5 = \left(\sqrt{R_0^2 - x^2} - \sqrt{(R_0 - T_0 + t)^2 - x^2} \right) (L_0 - l) \quad (5)$$

$$a_6 = (R_0 - T_0 + t) \left(\frac{\pi}{2} - 2 \sin^{-1} \left(\frac{x}{R_0 - T_0 + t} \right) \right) (L_0 - l) \quad (6)$$

$$a = 4 \times \left(\frac{\pi R_0^2}{2} - 4a_1 - 4a_2 - 2a_3 + 2a_4 + 2a_5 + a_6 \right) \quad (7)$$

여기서, a는 소결체의 표면적을 의미한다. Fig. 1은 각 변수를 설명하고 있다. 소결체의 반경과 길이보다 환형 소결체의 링 두께가 충분히 작으면 핵연료가 용해될 때, T₀가 가장 먼저 0에 이른다. 따라서 원통 형태와 달리 이런 형태의 환형 핵연료는 이론적으로 완전 용해 직전까지 표면적이 0에 이르지 못한다.

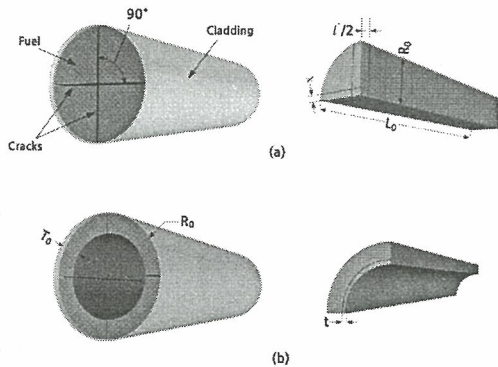


Fig. 1. Shape of fuel (a) solid type fuel (b) annular type fuel.

2.2 표면적 비율과 용해율

소결체 표면적과 용해율 간의 관계식을 통해 용해시간을 평가할 수 있다. 관련 식은 식 8, 9와 같다[2].

$$\frac{dW}{dt} = W_0 \frac{d\phi}{dt} = a \cdot IDR \quad (8)$$

$$a = a_0 F(\phi) \quad (9)$$

여기서, W_0 는 초기 핵물질 양이고, W 는 용해된 핵물질 양이다. 또한, ϕ 는 용해율이고, t 는 시간, IDR 은 단위 면적당 용해율을 의미한다.

R_0 를 0.418 cm로, T_0 를 0.0928 cm로, L_0 를 4 cm로 두고, 밀도를 10.2 g/cm³로 가정하면, 원통형태와 환형 핵연료의 표면적-용해율간 그래프를 산출할 수 있다. 그 결과는 Fig. 2와 같다. 원통형 핵연료는 표면적 비율이 0으로 줄어들면서 완전 용해되지만, 환형 핵연료는 T_0 가 0에 이르는 표면적 비율 0.62에서 완전 용해된다.

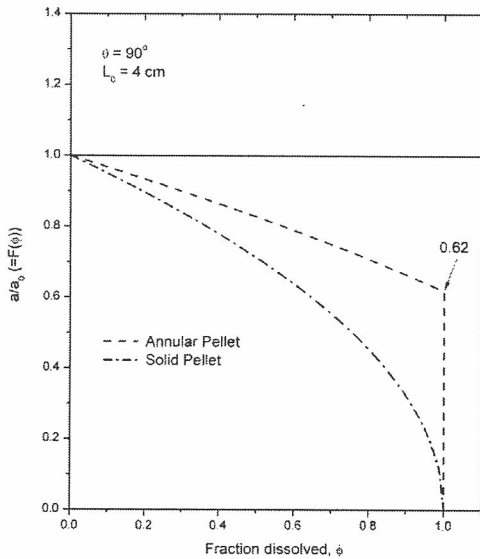


Fig. 2. Dissolved fraction and surface area ratio.

2.3 용해율 평가

본 연구에서 단위 면적당 용해율은 Ohsaki가 제시한 식 10을 활용하였다[2]. 식 8과 식 10을 정리하면 용해율 평가식은 식 11과 같다.

$$IDR = 7.54 \times 10^7 \exp(-7,549/T) (C_H)^2 \quad (10)$$

$$\frac{d\phi}{dt} = \frac{a_0}{W_0} F(\phi) [7.54 \times 10^7 \exp(-7,549/T)] C_H^2 \quad (11)$$

식 11을 이용하여, 원통형과 환형의 용해율을

평가하였다. HNO₃의 초기 몰농도는 5 mol/dm³를 사용하였다. 평가 결과는 Fig. 3과 같다. 원통형은 54분 만에 완전 용해되고, 환형 소결체는 16분 만에 완전 용해되는 것으로 평가되었다.

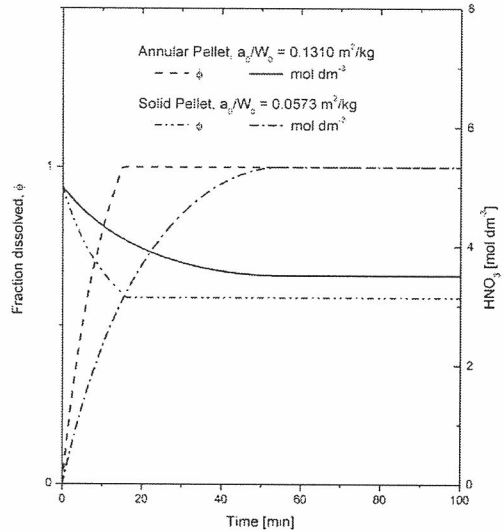


Fig. 3. Comparison of concentrations of HNO₃ and dissolved fractions.

3. 결론

환형 소결체는 완전 용해 직전까지 높은 표면적을 유지하고 있어 원통형 소결체에 비해 약 3배 정도 용해속도가 빠르다. 이런 특성은 피복관과 질산과의 접촉시간을 줄여 피복관 기계시편 제작에 보다 유리한 환경을 제공할 것으로 생각한다.

4. 참고문헌

- [1] 한국방사성폐기물학회, 2009년 춘계학술발표회 논문요약집, pp.324-325, 2009.
- [2] An Investigation into Dissolution Rate of Spent Nuclear Fuel in Aqueous Reprocessing, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol.41, No.2, pp.126-134, 2004.