

연소후 환형 UO_2 소결체의 450℃ 고온가열 산화시험

김대호, 방제진, 김선기, 양용식, 구양현
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
 kdh@kaeri.re.kr

1. 서 론

한국원자력연구원에서는 원자력연구개발 중장기계획 사업의 일환으로 수행중인 초고연소도 고성능 핵연료 과제에서 고효력의 이중냉각 환형핵연료가 개발 중에 있다. 이중냉각 환형 UO_2 핵연료는 기존의 상용 경수로 핵연료에 비해 넓은 열전달 면적과 얇은 소결체 두께의 형상으로 출력밀도 20%이상의 열출력 향상과 핵연료의 온도가 30% 이상 낮아지는 저온의 특성을 갖고 있는 핵연료이다. 이중냉각 환형핵연료의 특징으로 소결체의 변형을 최소화하고 핵분열기체를 현격하게 적게 방출하여 봉내압 등의 안전성이 확보되며, 핵연료의 안전성 기준이 되는 핵연료 용융온도의 충분한 여유를 확보함으로써 안전하고 경제성이 향상되는 고효력의 초고연소도 핵연료이다. 하나로 연구로를 이용한 이중냉각의 환형 UO_2 소결체의 초기연소특성을 검증하기 위해 조사시험이 실시되었고, 한국원자력연구원 조사후 시험시설을 이용한 일련의 조사후시험이 진행되었다. 초기연소거동 중 고밀화와 팽윤에 의한 소결체의 변위를 관심으로 집중적인 조사후시험 평가가 진행되었고, 본 가열시험을 통한 저연소도에서의 환형 UO_2 소결체의 안전성을 평가 하였다. 일본 후쿠시마 원전의 사용후 핵연료 저장조 냉각수 유출사고에 따른 사용후 UO_2 핵연료의 산화거동이 초미의 관심사로 대두되고 있다. 공기 중에 노출된 Zircaloy 산화로 인해 수소폭발이 발생하고 노출된 UO_2 소결체는 고온의 공기 및 증기상태에서 급격한 산화거동을 보이게 되며 소결체의 건전성을 훼손하게 된다. 노출된 UO_2 소결체는 연속적인 산화를 거쳐 공기 중에 비산하게 되어 주위의 오염이 불가피하게 된다. 일반적으로 연소후 UO_2 소결체는 U_4O_9 을 거쳐 U_3O_8 으로 완전 산화과정을 겪게 된다. 연소후 환형 UO_2 소결체의 고온가열 산화시험을 통해 핵분열기체 방출거동을 평가하였고, 전자주사현미경을 통한 미세조직의 변화를 관찰하였다. 이는 상대적으로 접촉면적이 넓은 환형 UO_2 소결체의 안전성을 평가하고 최적의 소결체 개발기술 확보에 활용될 예정이다.

2. 본 론

2.1 산화시험 및 시험 조건

2.1.1 산화시험

하나로 연구로를 이용한 이중냉각의 환형 UO_2 소결체의 초기연소특성을 검증하기 위해 조사시험이 2008

년 11월부터 2009년 4월말까지 EFPD 93.81에 걸쳐 실시되었고, 한국원자력연구원 조사후시험시설(PIEF)을 이용한 일련의 연소후시험이 진행되었다. 연구로에서 조사된 이중냉각 환형 UO_2 소결체는 Table 1.과 같이 90%TD, 93%TD, 96%TD, 98%TD 및 98%(L)/TD의 5 종류이며, 연소도는 8,120 MWd /MTU와 10,900MWd/MTU 두 종류이다. 산화시험에 사용된 소결체는 8,120 MWd/MTU의 평균연소도를 갖는 90%, 93%, 96%이며, 10,900 MWd/MTU의 평균연소도를 갖는 98%, 98%이다. 여기서 98% 소결체는 환형 피복관의 Gap 간격을 줄여 소결체의 Stress 변화를 관찰하기위해 두께가 약간 증가시킨 소결체이다. 가열시험은 두께가 2mm정도임을 감안하여 횡방향의 전부위를 사용하였으며 200mg ~ 300mg 정도 소결체 고품형태를 사용하였다.

Table 1. 시험 소결체 재료 및 제원.

구 분	제 원	비 고
분말 및 농축도	IDR 2.67%	
밀 도	90, 93, 96, 98 %	96%는 상용
외 경	14.62 mm	
내 경	10.28 mm	
길 이	8.5 mm	
결정립 크기	5 μ m 이상	상용
O/U 비	2.0 \pm 0.01	
불순물 농도	상용소결체 기준시방 기준	

2.1.2 산화시험 조건 및 방법

한국원자력연구원 사용후시험시설(PIEF) 9405 Hotcell에 설치되어 있는 사용후 핵연료 고온가열시험장비(Post-irradiation Annealing Apparatus, PLA)를 이용하여, 연소후 환형 UO_2 소결체 5종류에 대한 450℃ 고온가열 산화시험을 실시하였다. 산화시험을 통하여 시간에 따른 실시간 핵분열기체 방출거동을 분석하고, 산화 조건에서의 이중냉각 환형 UO_2 핵연료 특성자료를 생산하였다. 가열시험조건은 Table 2.와 같으며, 실시간 방출되는 Kr-85는 FHT8000의 베타계측기를 이용하여 60 sec 간격으로 측정하고 이와 병행하여 동시에 NaL 감마계측기로 측정하였다. 측정된 핵분열기체 Kr-85는 시험의 연소전 밀도와 결정립크기를 기준으로 연소후 밀도변화와 결정립크기변화를 고려하여 Kr-85의 방출거동을 평가하였다. 산화시험 이후 SEM 시험편을 제작하여 미세조직을 관찰하였다. 산화시험후 미세조직은 연소후 시험편과 비교하여 조직의 특성을 Kr-85 방출거동과 비교평가하였다.

Table 2. 고온가열 450℃ 산화시험 조건.

시 편	시편량 (g)	Holding Time	Helium ml/min	STDml/min-Air	비고 (연소도, MWd/kgU)
90%TD	192	10℃/min 승온 후 4 hrs	100	50	8.12
93%TD	360				8.12
96%TD	290				8.12
98%TD	340				10.90
98%(L)TD	280				10.90

2.2 고온 산화시험 결과

2.2.1 산화시편의 Kr-85 방출거동

고온가열 산화시험 시 방출된 Kr-85의 실시간 방출 거동은 소결체의 연소전후 밀도평가 및 결정립 성장결과를 반영하여 초기연소도에서 갖는 산화특성을 비교하였다. 연소후 결정립 크기의 경우 제조시 시편의 결정립크기 보다 성장하였다. 이는 UO₂ 소결체 Kr-85의 방출거동에 영향을 미치게 한다.

시편의 450℃ 산화가열시 90%TD를 갖는 시편의 경우 Kr-85의 방출은 2시간 유지후부터 시작되었으며, 93%TD 시편은 약 1시간 유지후 급격한 방출거동을 보였다. 96%, 98% 및 98L%의 밀도시편은 약 30분 유지후부터 서서히 산화되어 4시간에 걸쳐 완만한 Kr-85의 방출거동을 보였다. 상용 핵연료에서 사용되는 96%TD시편에서 Kr-85의 가장 적은양이 측정되었다.

Kr-85의 방출량은 Table 2와 같이 96%TD의 시편을 100% 방출기준으로 각각의 방출결과를 나타내었다. 시험결과 연소도를 고려하면 96%, 98%, 98L%TD 시편의 Kr-85 방출량은 거의 유사한 산화거동을 보이는 반면 90%TD 시편의 경우 약 2.4배의 방출거동을 보였다. Fig. 1.에서 보는 것과 같이 낮은 밀도의 시편에서 핵분열기체의 방출속도가 높은 밀도 시편에 비해 빠른 방출거동을 보이며, 밀도가 높은 시편이 안정된 방출속도를 보임으로써 밀도가 낮은 시편보다 안정적인 산화거동을 보이고 있다.

Table 3. 산화시편의 밀도, 결정립크기 및 Kr-85방출량.

Specimen	연소후 밀도	결정립크기		Kr-85 방출량	BU MWd/kgU
		연소전	연소후		
90%TD	98.1	2.70	3.32	237.5 %	8.12
93%TD	98.1	2.90	2.25	175 %	8.12
96%TD	96.1	8.6	10.60	100 %	8.12
98%TD	97.9	8.7	11.41	105 %	10.90
98%TD(L)	97.9	8.7	12.49	110 %	10.90



Fig. 1. 연소후 환형 UO₂ 소결체 산화시편의 Kr-85 방출거동.

2.2.2 가열시편의 미세조직 변화

연소후 환형 UO₂ 소결체의 고온가열 산화시험후 미세 조직의 관찰을 통하여 결정립의 변화정도 평가와 결정립 표면에서의 산화에 따른 핵분열기체 방출거동을 예측할 수 있다. 이는 핵연료의 고온 산화조건에서 시간에 따른 소결체의 변화를 확인할 수 있으며 핵분열기체의 방출경로 등의 연구에 적용된다.

Fig. 2는 연소후 각 시편의 산화시험후 미세조직이다. 저연소도의 특성상 모든 시편에서 유사한 산화거동을 보였다. 90%TD 시편의 경우는 산화에 따른 완전 분말화가 되지 않은 특징을 보이고 있으나 관찰결과 대부분의 산화가 진행된 것으로 나타났다. 저연소도에서 핵분열생성물이 작게 만들어진 이유로 연소전 UO₂ 소결체의 고온 산화 거동과 유사한 결과를 확인하였다.

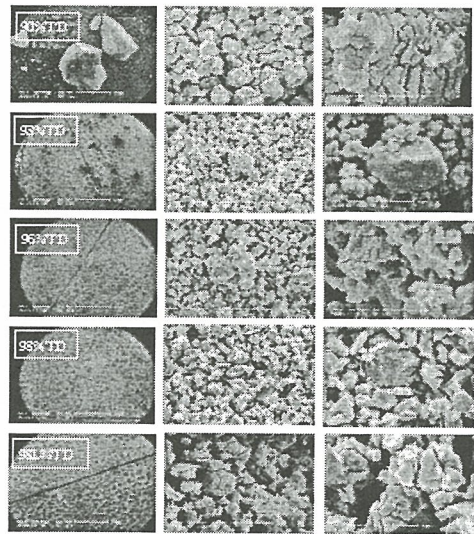


Fig. 2. 연소후 환형 UO₂ 소결체 시편의 산화시험후 미세조직.

3. 결 론

이중냉각의 환형 UO₂ 소결체는 초고연소도 고성능의 핵 연료 적용을 위해 원천기술개발 차원에서 연구개발 중에 있다. 저연소도 연소후 환형 UO₂ 소결체의 450℃ 산화시험을 통하여 각 시편별 핵분열기체의 방출거동과 미세조직의 변화 관찰 등의 안전성 평가를 수행하였다. 시험결과 4시간 안에 대부분의 소결체가 산화되는 것을 확인하였으며 핵분열기체 Kr-85의 시간에 따른 방출거동을 확인하였다. 핵연료의 공기 중 고온상태에서 소결체가 노출되었을시 UO₂ 소결체의 산화 거동평가에 활용할 수 있을 것으로 판단된다. 이후 30,000 MWd/MTU의 중간 연소도 연소시험을 통하여 이중냉각의 환형 UO₂ 핵연료의 고온산화에 따른 안전성을 확인할 예정이다.

4. 참고문헌

[1] 김대호 외, 고연소도 큰결정립 UO₂ 사용후 핵연료의 고온산화시험 특성, 한국방사성폐기물학회 2008년 추계학술발표회.