

韓國의 重水爐核燃料 製造技術開發經驗

*Experience of HWR Nuclear
Fuel Fabrication Technology
Development in Korea*



徐 庚 壽
〈韓國에너지研·重水爐核燃料事業部長〉

1. 序 論

韓國의 原子力發電所 建設은 1971년 古里原子力發電所 1號機를 시발로 하여 시작되었고, 1970년대의 유가과동으로 급진적으로 증가하였다. 1985년 현재로서 4基의 원자력발전소가 가동中이며, 5基의 發電所가 建設中에 있다.

原子力發電의 증가에 따라 韓國 政府에서는 核燃料 製造技術의 國産化 事業을 추진하였다.

核燃料에 대한 한국 정부의 政策은 加壓輕水爐 核燃料은 외국 핵연료 제조업체에서 부터의 기술전수에 의해 생산하고, 월성 원자로용 핵연료는 한국에너지연구소가 자체 개발한 제조기술을 적용하여 생산·공급한다는 것이다.

韓國에너지연구소는 核燃料 製造技術의 開發과 핵연료분야 요원에 대한 훈련을 위한 核燃料研究施設을 1978년에 완공하였다. 핵연료 제조에 관련된 이들 施設과 축적된 경험을 활용하여, 1981년에 월성 원자로용 핵연료의 개발이 시작되었다. 1983년3월에 한국에너지연구소에서 생산한 核燃料 試製品은 그들의 安全性과 性能點檢을 위해 캐나다 CRNL의 NRU 原子爐 및 照射後試驗設備를 이용하여 中性子照射試驗과 照射後性能試驗을 실시하였다. 이와 동시에 한국에너지연구소에서는 이들 핵연료에 대한 熱水力學 및 機械的 安全性 및 性能評價를 위한 爐外實驗을 Hot Test Loop 시험시설에서 수행하였다.

1984년9월에는 24개 核燃料集合體가 월성 원자로에 裝填되었고, 성공적으로 燃燒한후 인출되었다. 이로써 月城爐用 核燃料 製造에 대한 技術開發은 성공적으로 완수되었으며, 이를 바탕으로 월성 원자로에 소모되는 核燃料를 전량 자체공급하기 위한 핵연료 제조시설의 容량증가를 현재 進行中에 있다.

本稿에서는 핵연료 제조기술의 개발경험, 한국에너지연구소가 생산한 핵연료의 安全性 및

性能評價 그리고 이들 핵연료의 월성 원자로내 연소후 결과에 대한 경험을 논의한다.

2. 核燃料 製造技術의 開發

2.1 月城 原子爐用 核燃料

月城 原子爐用 核燃料集合體는 6가지의 구성품, 즉 이산화우라늄 소결체, 흑연이 도포된 지르칼로이 피복관, 지르칼로이 봉단마개, 지르칼로이 간격체, 지르칼로이 지지체 및 지르칼로이 봉단접합판으로 되어 있다. 集合體는 37개의 조밀하게 배열된 核燃料棒이 2개의 봉단접합판에 의해 양단을 용접한 원통형 핵연료다발로 구성되어 있다.

核燃料棒사이의 간격은 베릴륨금속을 용가재로 하여, 핵연료봉에 강납땜을 한 간격체에 의해서 유지된다. 技持體 또한 原子爐心の 壓力容器와 核燃料集合體사이의 간격을 유지하기 위하여 핵연료봉의 다발 바깥쪽에 경납땜 된다. 핵연료봉에는 약30개의 이산화우라늄 소결체가 장입되어 있으며, 헬륨가스를 충전한후 봉단마개를 저항용접에 의해서 밀봉한다. 피복관 내부의 흑연도포는 소결체와 피복관간의 상호작용을 감소시키기 위해서이다. 소결체는 압분성형, 소결 및 연삭된 원통형 펠릿모양의 천연 이산화우라늄으로 만들어진다. 월성 원자로용 핵연료의 제원은 表 1에 요약되어 있다.

2.2 核燃料 製造技術

月城型 核燃料 製造工程은 대략 세가지 주요 공정, 즉

- (1) 이산화우라늄 분말에서 부터 소결 및 연삭된 소결체를 생산하는 소결체 제조공정,
- (2) 부차물의 경납땜 및 봉단마개의 용접에 의해 핵연료봉을 생산하는 핵연료봉 제조공정,
- (3) 핵연료집합체의 조립공정으로 구분된다.

A. 이산화우라늄 소결체 제조

月城 原子爐에는 천연 이산화우라늄분말로 만들어진 이산화우라늄 소결체가 사용된다. 주로

〈表 1〉 월성형 핵연료집합체의 제원

집합체의 길이	495 mm
집합체의 외경(지지체 포함)	102.4 mm
집합체의 무게	23.67kg
우라늄의 무게	18.5 kg
피복관의 냉간 공칭외경	13.081mm
피복관 두께(평균)	0.419mm
연료봉간 냉간 간격(간격체에서 최소)	1.02 mm
이산화우라늄 냉간 공칭지름	12.154mm
외곽 연료봉의 이산화우라늄 적재길이	470.31mm
중간 연료봉의 이산화우라늄 적재길이	480.31mm
기타 연료봉의 이산화우라늄 적재길이	480.31mm

변환공정에 따라 결정되는 이산화우라늄분말의 특성은 소결체 제조공정기술에 큰 영향을 준다. 현재까지 開發된 주요 변환공정은 ADU(Ammonium Diuranate)공정, AU(Ammonium Uranyl Carbonate)공정 그리고 IDR(Integrated Dry Route)공정 등이 있다.

ADU工程 및 IDR工程에 의해 변환된 분말은 일반적으로 분말의 유동성 및 압축성 면에서 분말의 특성을 변화시키기 위한 분말준비 단계를 필요로 한다. 그러나 AUC工程에 의해 변환된 분말은 일반적으로 이러한 준비단계를 필요로 하지 않으며, AUC분말은 ADU나 IDR분말보다 자유로이 流動함으로써 최종단계까지 압분성형되고 소결되기에 충분한 특성을 갖는다.

核燃料 造製의 초창기부터 韓國에너지研究所는 AUC工程에 의해 변환된 이산화우라늄분말을 소결체 제조에 사용해 왔다. 이 분말을 사용함으로써 제조공정은 다음과 같은 4단계로 축소될 수 있다.

(1) 분말은 압분용 고체 윤활제를 혼합하거나 또는 압분용 압분치구벽에 직접 기름막으로 윤활된다.

(2) 분말은 약5.5~6.0g/cc의 성형밀도를 갖는 최종크기의 성형체로 압분 성형된다.

(3) 압분된 성형체는 약1700+/-50degreeC의 수소 혹은 암모니아를 분해한 수소 및 질소(3

: 1) 분위기하에서 연속 소결로로 소결된다.

(4) 소결후에 이들 소결체는 무중심 연마기로 연삭되고, 최종연삭된 소결체는 품질검사된다.

B. 燃料棒 製造

지르칼로이 피복관은 길이방향 및 원주방향 결함에 대해 초음파탐상검사한후 요구되는 길이로 절단하고 탈유세척한다. 支持體 및 간격체는 진공증착방법을 사용하여 베릴륨도포하고 피복관에 점용접한후 경납땜공정을 수행한다.

경납땜을 위한 加熱은 진공용기안에서 유도 가열방법에 의한다. 경납땜공정은 지지체나 간격체 아래에서의 완벽한 공정합금(Zr-5%Be)의 용입이 요구되며, 피복관의 열영향부에서는 과다한 β -입자 성장이 일어나지 않도록 매우 면밀하게 관리되어야 한다. 경납땜공정에 이어서 피복관 내면에는 콜로이드 상태의 흑연용액을 도포하여 흑연보호막을 형성한후 진공가열 건조시킨다. 피복관은 정밀한 길이로 기계가공하여 양단이 봉단마개용접될 수 있도록 준비한다.

크랙이나 칩 결함에 대해 육안검사된 소결체들은 규정된 길이로 적재되어 피복관에 장입된다. 이산화우라늄 소결체가 장입된 피복관은 봉단마개 용접기로 이동되어 燃料棒으로 생산된다. 저항용접기에 의한 봉단마개 용접작업은 燃料棒內的 공기가 제거되고, 헬륨가스로 충전된 상태에서 용접한다. 특히, 용접공정은 적절한 용접조건들이 유지됨을 보장하기 위하여 계속적으로 철저히 감시하여야 한다. 최종적으로 燃料棒은 용접돌기부의 제거를 위해 기계가공 된다.

C. 지지체 및 간격체의 경납땜을 위한 베릴륨 도포

Zr-5%Be 공정합금을 형성하기 위한 용가제로서의 베릴륨은 매우 유독하므로, 安全한 작업환경유지 및 공기오염도측정을 수행하여야한다. 베릴륨은 진공증착방법에 의해 미리 성형

된 지지체의 안쪽면 또는 간격체의 양측면에 증착한다. 이 절차는 먼저 베릴륨을 증착한 지르칼로이 스트립을 성형하는 작업에 비해서 환경오염을 피할 수 있어 시간과 재료를 절감할 수 있는 잇점이 있다. 지지체와 간격체는 경납땜에 앞서 점용면으로 피복관에 고정시킨다.

D. 흑연도포

核燃料棒에서의 피복관 내면에 도포된 흑연 보호막은 이산화우라늄 핵연료 소결체와 지르칼로이 피복관간의 윤회작용을 함으로써 出力의 급상승으로 인해 발생하는 核燃料의 결함을 줄일 수 있다.

흑연도포는 특정 요건을 만족해야 하는 바, 이는 연속적이고 균일하며, 지르칼로이 표면의 흡착력이 매우 좋아야 하고, 마모에 잘 견디고, 불순물이 적어야 한다.

흑연도포는 유출방법(Flooding Method)으로 수행되었으며, 흑연도포된 피복관은 탈가스 처리한다. 흑연도포된 피복관은 진공이 1/100000 Torr이하이고, 온도가 300 degree C이상인 탈수소용 爐內에 장입되었다. 후처리가 끝났을때 爐內에 장입되었던 진공용기는 급속냉각을 위해 加熱爐에서 꺼낸다.

도포두께의 검사는 베타선 후방산란 방법으로 수행한다. 이 검사의 관리는 통계적 샘플링 계획에 따른다.

E. 봉단마개 용접

月城型 核燃料에서는 核燃料集合體가 加壓輕水爐型 核燃料보다 짧은 연료봉으로 구성되어, 훨씬 많은 봉단마개 용접을 요하므로 봉단마개 용접의 중요성이 강조된다. 용접공정의 작업, 기계 및 금속학적 특성, 용접의 질에 대한 信賴度 그리고 經濟的인 측면에서 전기저항 용접공정이 최상의 방법으로 알려져 있다.

전기저항 용접공정은 지르칼로이 봉단마개를 피복관에 용접함에 있어 다음과 같은 많은 利點을 갖는다.

○機械的 特性

봉단마개를 피복관에 완벽하게 봉합시킬 수 있다.

○부식특성

기체의 포획을 최소화할 수 있다.

○금속학적 특성

매우 작은 결정입자와 연속구조를 갖는 적은 열영향부위를 얻을 수 있다.

○경제적 이점

전기저항 용접공정은 짧은 시간내에 용접이 가능하다.

견고한 용접부위를 얻기 위해서는 다음과 같은 세가지 중요한 용접변수들이 최적화 되어야 한다.

○熱에너지週期에 관한 변수

○加熱週期에서의 소성변형에 관한 변수

○봉단마개의 세척방법과 피복관 끝가공

용접후 용접부위에 대한 헬륨누출검사, 금상학적 검사, 인장 및 필 시험 등이 용접부의 질을 평가하기 위해 통계적 샘플링에 근거하여 실시되었다.

F. 집합체조립

연료봉과 봉단접합판의 조립은 저항용접의 일종인 점용접에 의해 수행되며, 이때 산화를 방지하기 위하여 알곤가스 분위기의 보호아래 수행한다. 용접은 최초 핵연료 장전 및 연소중반에 되는 응력에 견딜 수 있는 충분한 강도를 가져야 한다. 현재까지는 原子爐內에서의 오염 및 봉단접합판 용접부 파열에 관한 문제점들은 없었다. 따라서 核燃料集合體가 갖는 기계적 강도는 적절한 것으로 입증되었다.

이 工程은 공정중 검사로서 용접강도에 대한 토르크시험방법으로 점검 및 관리되었다. 그러나 집합체 용접공정은 생산작업 전에 자격검정 되어야 한다.

집합체 용접중 연료봉은 요구되는 집합체 치수에 만족하도록 정밀용접공 지그에 고정된다.

굽혀진 피복관 측관 측정용 게이지(bent tube gage)는 原子爐의 핵연료 장전관(fuel channel)의 관봉합연결부(rolled joint section)를 통과하기 위한 능력을 점검하기 위하여 집합체의 최대직경을 점검하는데 사용된다. 조립후 集合體設計에 명시된 모든 치수들은 특별히 제작된 게이지를 사용하여 점검되어야 한다.

2.3 品質保証

核燃料 製造에서의 품질보증은 핵연료가 原子力發電所의 1차적인 放射線源이라는 사실때문에 특히 중요하다. 1969년에 미연방규정 10 CFR 50 Appendix B의 품질보증 표준이 처음 출현한 이래, 이는 품질보증 표준의 기본 '헌법'이 되고 있다. 현재는 ANSI N45.2, ANSI/ASME NQA-1, ASME Code Sec. III, IAEA 50-C-QA 등의 수많은 품질보증 표준들이 활용되고 있다. 各國은 그들 나름대로의 품질보증 표준을 선택, 적용하고 있으나 이들 모든 표준들은 다같이 10 CFR 50 Appendix B를 근거로 하고 있다.

우리는 캐나다에서 개발된 캔두형 핵연료와의 일차적 관계로 인하여 먼저 캐나다표준, 즉 캐나다표준협회의 CSA Z299시리즈 표준을 도입하였다. CSA Z299시리즈는 다음의 4단계로서, 더 엄격한 요구사항 순으로 되어 있다.

○CSA Z299.1은 품질보증계획 요구사항

○CSA Z299.2는 품질관리계획 요구사항

○CSA Z299.3은 품질확인계획 요구사항

○CSA Z299.4는 검사계획 요구사항

韓國에너지研究所가 생산한 核燃料 試製品은 CSA Z299.1의 품질보증 표준에 의해 제조하였지만, 韓國政府와 事業主(韓電)가 10CFR 50 Appendix B를 그들의 표준으로 적용하고 있어, 우리도 10CFR 50 Appendix B로 품질보증 적용방침을 변경하였다. 그러나 두가지의 표준은 내용상 거의 동일한 개념을 갖고 있다.

따라서 우리의 品質保証計劃書 및 절차서는

10CFR 50 Appendix B의 18개항에 따라 작성되었다. 이들 품질보증 절차서들을 실무에 적용하기 위하여 품질관리지침서, 작업지침서 등의 보조문서들이 또한 작성되었다

월성형 핵연료 제조에서의 특수공정은 봉단마개 용접, 지지체 및 간격체의 경납땜 그리고 봉단접합판 용접이다. 이들 공정들은 생산에 앞서 자격검정되어야 한다. 구입검사, 공정중 검사, 최종검사와 같은 검사체제와 시험검사장비에 대한 검교정 체제는 핵연료의 품질관리를 위해 잘 수립되어야 한다.

3. 安全性 및 性能評價

3.1 爐外試驗

1982년에 한국에너지연구소는 重水爐核燃料 集合體의 실험을 위한 爐外試驗裝置施設을 설계, 건설하였다. 이 시설은 중수로용 핵연료 실험에 적합한 실물크기의 핵연료장전관(fuel channel)을 포함하고 또한 약간의 변형에 의한 안전관련 실험도 가능하도록 되어 있다. 韓國에너지研究所에서 만든 核燃料集合體 試製品의 性能 및 安全性를 평가하고 보증하기 위해, 韓國에너지研究所는 1983년과 1984년에 일련의 爐外實驗을 수행하였다.

高温實驗設備內에서의 爐外實驗은,

- 압력강하시험
- 강도시험
- 충격시험
- 측류(Cross Flow)시험
- 내성(Endurance)시험 등이 있다.

압력강하시험은 목적은 核燃料集合體에서의 마찰 및 form-drag force에 따른 압력강하가 허용될만 한가를 점검하기 위해서이다. 강도시험은 핵연료 장전중 장전기계내의 측면에서 부터의 수압을 큰 손상없이 견딜 수 있는지를 확인하기 위해서이다. 충격시험은 핵연료집합체가 핵연료 재장전 작업중 충격력을 큰 손상없이 견

딜 수 있는지를 확인하기 위해서이다. 측류(cross flow)시험은 핵연료집합체가 정상적인 재장전과정에서 수분동안 그리고 장전기계 고장시 더 장기간 발생하게 될 선형 관구멍 주위의 측류하에 처해 있게 될때 그 견고성을 유지할 수 있는지를 확인하기 위해서이다. 내성시험의 목적은 핵연료집합체가 原子爐內에서 그들의 수명기간동안 안전하게 사용될 수 있으며, 압력관의 fretting damage가 허용할만 한지를 확인하기 위해서이다.

실제 원자로부터 가혹한 시험조건과 엄격한 평가방법으로 수행한 모든 실험결과를 고찰해 볼때, 한국에너지연구소가 만든 핵연료 시제품의 安全性 및 性能은 합격수준이었으며, 일차열 전달시스템과 핵연료장전관 및 핵연료취급시스템과 합치될 수 있었다. 따라서 韓國에너지研究所 核燃料 爐內 使用이 가능케 되었다.

3.2 爐內實驗

韓國에너지研究所가 제조한 2개의 核燃料 試製品은 1983년 초크리버원자력연구소(CRNL)의 NRU原子爐에서 照射試驗되었다. 2개중 A-GM으로 명명된 핵연료집합체는 1.58w/o U-235의 농축우라늄으로 만들어졌으며, AGP로 명명된 다른 하나는 천연우라늄으로 만들어졌다.

CRNL에서의 핵연료 조사시험의 주목적은 한국에너지연구소에 의해 제작된 핵연료집합체가 月城型 原子爐內에서 정상적인 의무주기를 견딜 수 있는가를 입증하기 위함이었다. 照射後試驗에서의 주요 관심분야는 소결된 이산화우라늄 펠릿의 품질과 지르칼로이 용접, 특히 봉단마개 용접의 품질에 있었다. 결함있는 용접부에서의 작은 누출은 일반적으로 약40MWh/kg U의 연소 이전에 발생하기 때문에 이들 핵연료는 결함이 일반적으로 발생하기에 필요한 것보다 훨씬 초과된 목표연소도에 도달하도록 실질적인 출력으로 조사되었다. 이 목표연소도는 A-GM은 120MWh/kgU이었고, AGP는 60MWh/

kgU이었다.

Questar 망원경으로 관찰한 이 2개의 핵연료 집합체는 양호하였으며, 봉단접합판에 용접된 각 연료봉은 부착된 상태에 이상이 없었으며, 지지체는 손상없이 깨끗했고, 심한 마모가 없음이 관찰되었다. 링 게이지에 의한 검사결과는 직경에 미소한 변화가 있었으며, 수중에서의 핵연료 육안검사에서는 핵연료 외관상 아무런 이상도 찾아볼 수 없었다. 핵연료의 결함검출에 뛰어난 성능을 나타내는 냉각수 순환계통에서의 감마방사능감시에서 核燃料 照射中 순환 냉각수에 감마방사능이 없다는 사실은 조사종료시까지 핵연료집합체가 결함없이 연소하였음을 증명하는 것이다. 또한 이 핵연료집합체는 각각 120 및 60MWh/kgU의 목표연소도를 초과하였다. 따라서 한국에너지연구소에서 제조한 이 핵연료집합체 시제품의 우수성이 증명되었다.

4. 韓國에너지研究所 核燃料의 月城 原子爐內 裝填

한국에너지연구소에 의해 수행된 爐外實驗과 CRNL에 의해 수행된 爐內實驗에 따라서 카나다는 한국에너지연구소 핵연료의 성능과 안전성을 보장함으로써 월성 원자로에 24개 핵연료 집합체의 장전이 결정되었다. 이는 상업용 원자로내에 최초로 장전되는 한국에너지연구소 핵연료집합체인 만큼 380개의 原子爐心의 핵연료 장전관에서 부터 장전할 장전관을 선정하는데 있어 다음 사항들이 고려되었다.

(1) 결함 핵연료집합체를 검출하기에 적절한 핵연료장전관일 것.

(2) 수중 ZCU 화학성분에 영향을 주지 않고, 또 영향받지도 않는 핵연료장전관일 것.

(3) 제어봉에 의한 영향이 없는 핵연료장전관일 것.

(4) 장전중 FARE기구(tool)에 의해 냉각수 유량감소를 받지 않는 핵연료장전관일 것.

(5) 정규 장전계획에 따라 장전될 수 있는 핵연료장전관일 것.

핵연료는 월성 원자로의 정기점검후에 즉시 장전되었다. 선택된 장전방법은 정상장전방법인 8개 교환방식이었다. 앞에 언급한 사항을 고려하면서 16개의 첫 장전은 1984년9월8일 D-9 및 T-9 핵연료장전관에 수행되었다. 그후 9월 11일에 K-9 핵연료장전관에 8개의 핵연료집합체가 장전되었다. 각 핵연료장전관중 4개씩의 핵연료집합체는 원자로내에서 성공적인 6개월간의 연소후에 1985년3월 및 4월에 회수되었으며, 잔여의 12개 핵연료집합체는 1년후 1985년 9월말에 회수되었다.

12개 핵연료집합체의 평균 연소도는 AECL 설계시방서 요건인 6124-6768MWD/TU의 범위내인 6312MWD/TU이었다. 한국에너지연구소 핵연료의 견고성은 원자로내의 지발중성자 검출기에 의해서 확인할 수 있었다. 한국에너지연구소 핵연료는 평균연소도 및 최대출력 발생 요구를 만족시켰으며, 상업용 원자로내에서 어떠한 장전결함도 보이지 않았기 때문에 핵연료 제조기술의 국산화 사업은 성공되었음이 확인되었다.

5. 結 論

重水爐核燃料 製造技術의 國產化事業은 爐內, 爐外實驗뿐만 아니라 상업용 원자로내에서의 실제 연소에 의해서도 성공적으로 완수되었다. 본 사업이 수행되는 동안에 설계, 소결체 가공, 연료봉 제조, 핵연료집합체 조립, 품질관리 및 품질보증, 爐內 및 爐外實驗 등의 많은 중수로 핵연료 관련기술이 개발되고 축적되었다.

이렇게 축적된 경험과 기술은 다른 형의 핵연료 설계 및 제조기술 개발에 많은 도움을 줄 것이며, 이러한 기술을 바탕으로 현재 시험시설을 확장하여 월성 원자로용 핵연료의 전량을 공급할 계획이다.