

輕水爐燃料의 國際動向

市川 達 生

日本原子力研究所 東海研究所 副所長

최 근 국제적으로 연료의 고연소도화가 활발히 진행되고 있는데 그 정도는 각국의 정책이나 경제적 요인에 따라 다르다.

미국에서는 재처리를 하지 않기 때문에 고연소도화는 저장능력의 증대, 발전소 외부로의 수송 및 저장비용 절감, 연료사이클 비용절감 등이 주요인으로 되어 있다. 또 미국에서는 운전사이클의 길이도 18개월이 길어져 24개월 운전을 하고 있는 발전소도 있다. 운전사이클의 장기화는 경제적 측면에서 고연소도화를 추구한다.

한편 유럽에서는 고연소도화의 요인이 미국보다 강해서 주로 재처리나 저장, 수송 등 백엔드비용 절감을 목표로 하고 있다.

日本에서도 사용후연료 발생량의 감소, 연료사이클 비용절감 등의 차원에서 고연소도화가 진행되고 있다.

세계의 주요 국가에서의 Batch引出 평균 연소도의 현황과 목표가 <표 1>에 표시돼 있다. 미국의 목표치는 종래 DOE(미국에너지성)의 것 대신에 최근 EPRI(미국전력연

구소)가 1997년까지 달성하려는 목표인 60GWd/t가 표시돼 있다.

日本에서는 안전심사에서 인정되고 있는 연소도의 상한치는 BWR에서 연료집합체 최고 50GWd/t, PWR에서 48GWd/t이지만 현재 이것을 모두 55GWd/t로 높일 계획이다.

세계의 연소도 실적은 1990년에 PWR 연료집합체에서 58GWd/t(Fragema), 60GWd/t(WH), BWR 연료집합체에서는 8×8형이 45GWd/t 이상(GE), 9×9형이 50GWd/t(Siemens/KWU) 등으로 보고되어 있다.

연료의 신뢰성에 대해서는 최근

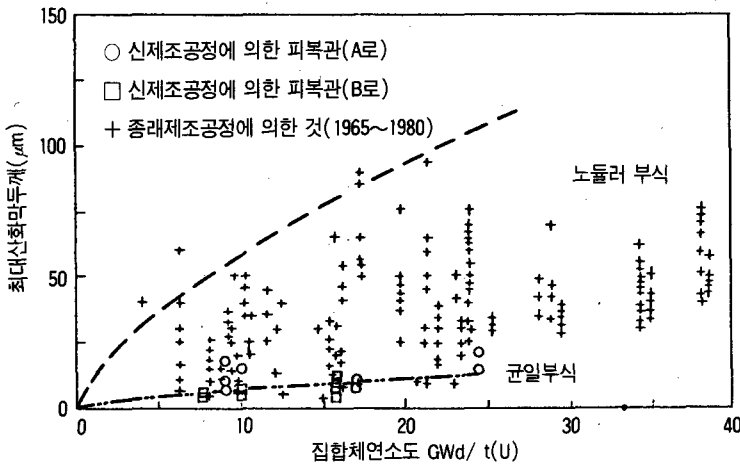
국제적으로 연료파손율이 현저하게 개선되었다. 현재 연료봉의 파손율은 유럽에서 10⁻⁵개/원자로·년 이상이지만 日本에서는 10⁻⁵개/원자로·년 이하로 매우 낮다. 유럽에서의 연료파손의 주요인으로는 금속편 같은 금속파편에 의한 Fretting 부식이나 PWR의 배플 젯트에 의한 Fretting 부식, BWR의 CILC(銅 등을 포함한 피복에 의해 일어나는 국부부식) 등을 들 수 있다. 고연소도화에 따라 발생하는 파손은 인정되고 있지 않지만 고연소도에서의 건전성을 확보한다는 관점에서 피복관 부식, 연료봉 내 압상승의 주요인이 되고 있는 FP가스 방출, 연료봉 변형과 PCI(펠릿과 피복의 상호작용), 고연소도 특유의 Rim 효과 등이 주목되고 있다.

또 Batch引出 평균 연소도 70GWd/t(펠릿 최고연소도 약 120GWd/t)의 超고연소도의 연료개발이 국제협력하에 이루어지고 있는 경우도 있다.

日本の 경수로에서 MOX 연료

<표 1> 주요 국가의 Batch 평균 인출 연소도

구 분	PWR	BWR	비 고
미 국	현황 36 목표 60	30 60	保守의 고연소도와 관련된 파손은 일어나지 않고 있다.
프랑스	현황 33, 42 목표 60		농축도는 5% 초과할 가능성이 있다. 고농축의 경우에는 농축봉산수가 필요하다.
독 일	현황 50 목표 55	45 50	고연소도화를 적극 추진하고 있다.
벨기에	현황 40~45 목표 ~60		고연소도화는 필수적, MOX 연료의 연소도도 UO ₂ 연료 정도가 되도록 노력 중이다.



〈그림 1〉 BWR에서의 연료봉 부식(소둔변수를 낮게 유지하는 신제조공정과 종래 공정과의 비교)

이용에 관해서는 1991년 原子力委員會 原子燃料사이클專門部會의 보고서가 발표되고 구체적인 기술검토가 이루어지고 있다. 유럽에서는 이와 관련된 데이터가 많이 축적되어 있다. 日本에서도 動力爐核燃料開發事業團(動爐) 산하의 후젠(普賢爐)와 쓰루가(敦賀) 1호로, 미하마(美浜) 1호로에서 사용된 실적이 있다.

여기서 연료의 고연소도화 및 경수로에서의 MOX 연료 이용에 관한 국제적인 관점에서 연료의 건전성에 관해 살펴보기로 한다.

피복재 부식

지르칼로이 피복재의 부식량은 노내에서의 사용시간과 함께 커지기 때문에 연료수명을 제한하는 요인으로 주목되고 있다. 노내에서의 부식양상은 BWR과 PWR에서는 사용환경의 차이로 달라지게 된다.

BWR의 경우는 얇고 균일한 산

화막에 불연속적으로 렌즈 모양의 노듈러(Nodular) 부식이 발생한다. 노듈러 부식은 피복관의 열처리에 의해 큰 영향을 받는다. 제조공정에서는 베타 담금질을 해 합금원소의析出物을 미세화하고 그후의 공정에서 온도가 높아지지 않도록 관리해 이른바 燒鈍변수가 낮게 유지되도록 제어한 피복관에서는 노듈러 부식을 크게 억제할 수 있다는 것을 알았다. 이 방법은 국제적으로도 널리 사용되고 있다.

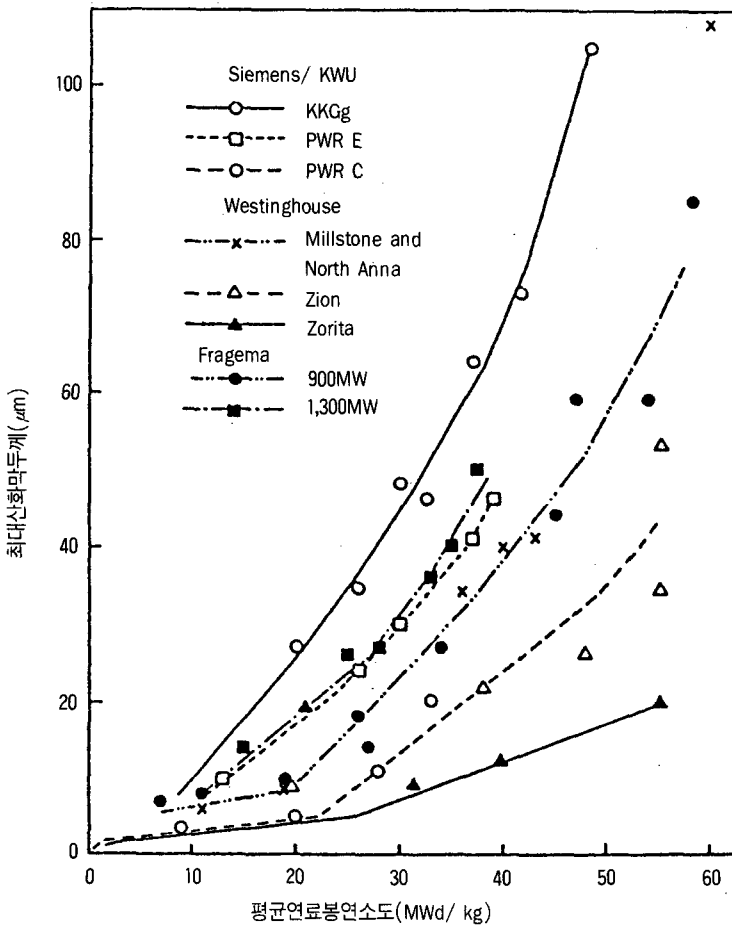
부식량과 연소도의 관계에 관한 예가 〈그림 1〉에 나타나 있다. 최근의 보고에서는 입자의 미세화 외에 지르칼로이 소재에 용해돼 있는 합금원소의 농도가 노듈러 부식에 큰 영향을 미치는 것으로 밝혀졌다. 이것은 조사에 의해 석출물 중의 철분 등이 소재에 녹아들어가 고연소도에서는 노듈러 부식이 개선된다는 보고내용을 뒷받침하는 것이다. 지금과 같은 목표 연소도라면 노듈러 부식은 별로 문제가

되지 않는다.

PWR 부식의 특징은 BWR의 경우와는 달리 均一부식이다. 따라서 냉각재와 접하는 피복관의 외면은 도가 중요하다. 노내에서는 노외에 비해 부식속도가 빨라진다. 고연소도까지의 PWR에서의 부식 데이터의 예가 〈그림 2〉에 표시돼 있다. 부식량은 노에 따라 매우 다르다는 것을 알 수 있다. 이는 주로 열수력적인 境界조건 즉 냉각재의 입구온도, 유속, 평균 熱流束 등 외에 출력履歷이 다르기 때문이다.

이들 중 가장 부식속도가 빨랐던 독일의 KKG爐의 경우는 냉각재 입구온도가 특히 높았던 것이다. 미국의 North Anna 1호로의 경우는 부식량은 크지만 이는 노의 출력을 증가시킨 결과 냉각재 온도가 높아진데 원인이 있는 것으로 일반적인 데이터라고는 볼 수 없다. 부식에 의해 생기는 산화막 두께가 커지면 산화막의 열전도율이 낮아지기 때문에 피복관 금속의 외면온도가 높아져 부식량이 커지는 피드백효과가 나타난다. 이 효과는 적절한 모델을 통해 평가가 이루어지고 있다. 또 BWR과는 달리 燒鈍변수가 낮으면 부식이 커지기 때문에 제조공정에서 적절한 온도관리가 이루어지고 있다.

부식량이 증가하면 부식때 발생하는 수소의 약 10%가 피복관에 흡수된다. 노내 사용으로 500ppm 이상의 수소를 흡수한 피복관이라도 연료舉動에는 나쁜 영향을 주지 않는다. 또 爐外시험에서는 1,000ppm 이상에서도 延性低下는 낮은 것으로 보고돼 있다. 최근 지르



〈그림 2〉 각종 PWR에서의 연료봉 부식

칼로이-4의 합금조성원소인 주석을 규격범위내에서 줄이면 부식억제에 큰 효과가 있는 것으로 밝혀져 지금의 PWR에서는 저주석 피복관이 사용되고 있다. 또 日本을 포함해 각국에서는 지르코늄을 주성분으로 부식억제효과가 있는 니오븀, 주석, 철 등을 첨가한 新합금이나 2중 피복재가 개발되고 있다. 〈그림 3〉에 그 한 예로 웨스팅하우스社의 신형 피복관 ZIRLO(Zr-1.0 Nb-0.1 Fe), 저주석 피복관

및 표준피복관 연료봉의 노내 부식 상태를 보였다.

FP 가스 방출

펠릿에서 연료봉으로의 FP 가스 방출은 연료봉의 내압을 높여 펠릿과 피복관간의 Gap Conductance에 영향을 주기 때문에 안전설계상 중요할 뿐만 아니라 안전평가면에서도 사고발생시에 연료봉 Plenum 등에 축적된 방사성가스가 연료봉

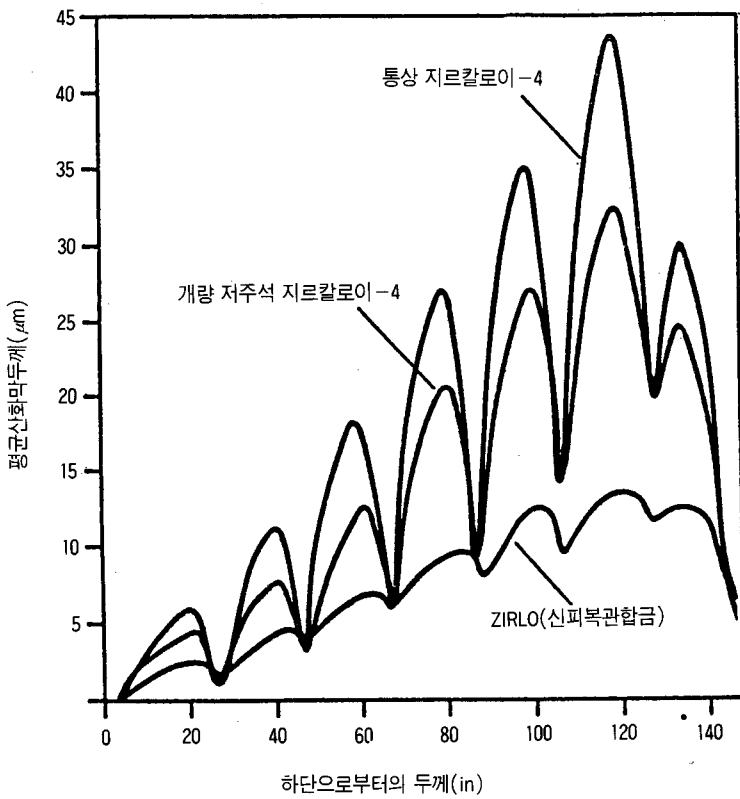
파손과 함께 노내에 방출되기 때문에 사고시의 피복평가를 하는데 중요하다. PWR 연료에서는 고연소도의 일정한 조건하에서 연료봉 내압이 외압을 초과하는 것을 허용하고 있다.

최근 고연소도까지 발전로에서 사용한 연료봉의 FP 가스 방출률 측정 데이터가 많이 보고되고 있다. FP 가스 방출은 주로 연료온도에 따라 달라진다. 〈그림 4〉와 〈그림 5〉에 각각 BWR과 PWR의 대표적인 측정 예를 보였다.

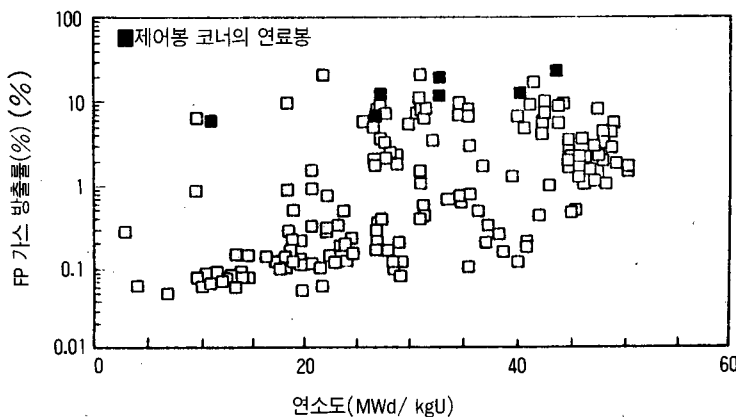
BWR에서는 일반적으로 출력이 크다는 등의 이유로 20~30% 정도까지의 FP 가스 방출을 보이는 것도 있지만 연소도가 높아지면 방출률은 포화상태에 들어간다. 이는 고연소도에서는 출력이 낮아진다는 것과 고연소도에서는 방출률이 급격히 높아지는 일이 없기 때문인 것으로 알려져 있다. PWR에서는 그림에서 보는 바와 같이 일반적으로 고연소도에서도 방출률이 몇% 정도 밖에 되지 않는다는 경우가 많다.

이 그림에서는 고연소도화에 대응하기 위해 농축도를 높인 연료봉의 데이터도 포함돼 있지만 최근 독일의 PWR에서 53GWd/t까지 고연소도화 대응 농축도를 높인 연료봉에서는 10% 정도의 FP 가스 방출을 볼 수 있다. 그러나 이 경우에는 출력이 약간 높고 펠릿과 피복관 사이의 갭도 크다.

10여년에 걸쳐 실시된 미국 바텔 연구소(BNWL)에서 주관한 고연소도계획이 끝나 데이터가 공개되었다. 펠릿 피크 연소도에서 80GW



〈그림 3〉 North Anna爐에서의 2사이클 사용후(약 38Gwd/ t)의 수축부식



〈그림 4〉 BWR 연료봉 연소에 따른 FP 가스 방출률의 변화 예(스웨덴)

d/t를 초과하는 연소도까지의 FP 가스 방출 데이터를 얻어냈지만 방출률에 관해서는 지금까지의 인식

을 바꾸어 놓은 것은 아니다. 또 이 계획에서는 中空펠릿은 中實펠릿에 비해 같은 線출력밀도에서는 FP

가스 방출이 매우 적다는 것, 헬륨 가압연료는 低, 中연소도에서 FP 가스 방출을 억제하는 효과는 있지만 고연소도에서는 별로 변하지 않는다는 등 많은 흥미있는 사실을 발견했다.

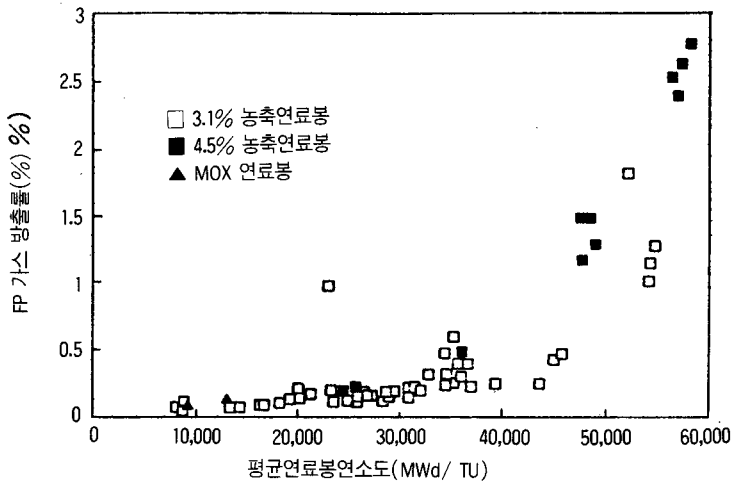
또 부하추종운전의 FP 가스 방출효과에 대해서는 노내계측실험 결과 그 가속효과를 볼 수 없었다.

고속로에서는 연소도가 50~60 Gwd/t를 넘으면 바깥 둘레의 저온 부부터 FP 가스가 방출하게 되어 90Gwd/t 정도에서 포화상태에 이르는 현상을 볼 수 있었다. 이것은 경수로의 超高연소도에서의 FP 가스 방출을 예측하는데 참고가 된다.

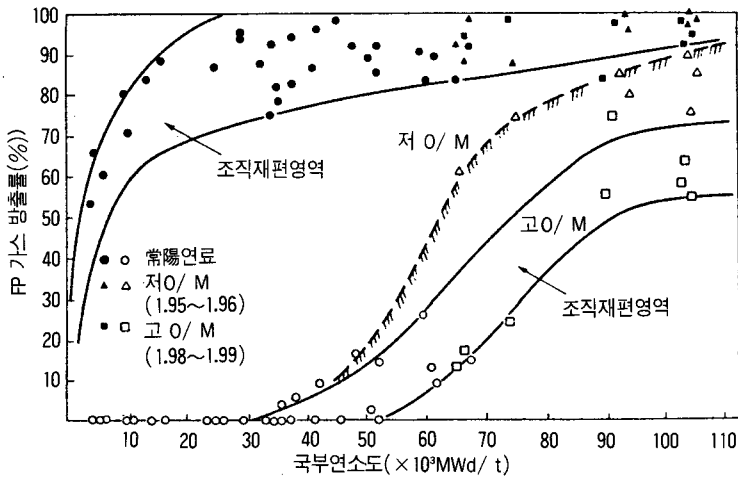
결론적으로 경수로에서는 BWR, PWR 모두 현재 계획하고 있는 것 같은 연소도에서의 FP 가스 방출에 대해서는 연료봉 설계를 통하여 충분히 대응할 수 있다. 그러나 앞으로 초고연소도까지 고려하게 되는 경우 다음에 밝힐 Rim 효과 등의 연소도 가속을 고려해야 할 지도 모른다.

Rim 效果

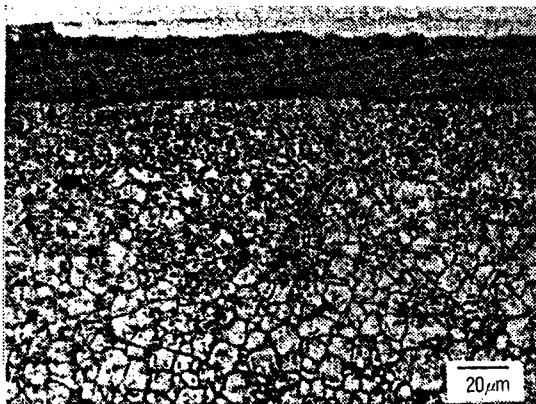
경수로 연료에서는 플루토늄이 펠릿 外緣部(Rim부)에 국부적으로 생성돼 연소한다. 연소도가 약 40Gwd/t를 넘으면 림부의 연소도는 70Gwd/t를 초과하고 림부 100~200μm에는 기포가 많은 영역이 생겨 결정입자도 대폭 미세화된다. 이 현상은 1985년 미국원자력학회(ANS) 학술회의에서 41GWd/t 연소도의 펠릿에 대해 처음으



〈그림 5〉 PWR 연료봉 연소에 따른 FP 가스 방출률의 변화 예(프랑스)



〈그림 6〉 고속로 연료로부터의 FP 가스 방출

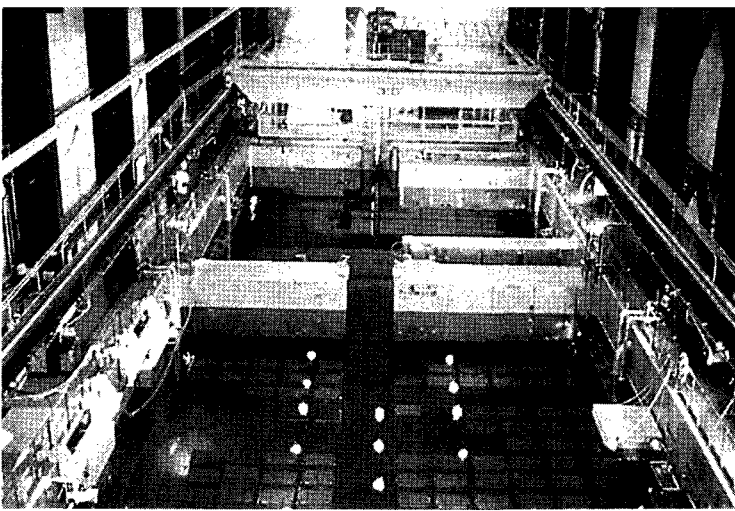


〈그림 7〉 펠릿 평균연소도 54MWd/kgM의 Rim부에 생긴 미세조직의 예(바텔 고연소도효과계획)

로 보고된 것이지만 그후 여러 기관으로부터 보고가 되어 있다. 〈그림 6〉과 〈그림 7〉에 림부의 전형적인 사진과 EPMA(Electronic Probe Micro Analyser)에 의한 크세논과 네오디뮴의 반경방향의 분포상황을 보였다. 네오디뮴은 연소도 분포상황을 나타내고 크세논은 림부로부터의 FP 가스의 국부적인 방출을 나타내고 있다. 림부 조직을 SEM(走査型 전자현미경)으로 관찰하면 결정입자는 마이크로 이하의 亞 결정으로 되어 있다.

림부의 이같은 현상이 중요시되는 것은 첫째 熱障壁이 될 가능성이 높다는 것, 둘째 이 부분으로부터의 FP 가스 방출이 많아질 가능성이 있다는 것, 셋째 사용후연료를 그대로 폐기하는 경우 지하수와 맨 처음 접촉하는 것이 이 플루토늄 성분이 많고 기포가 많으며 표면적이 큰 림층이라는 것 때문이다.

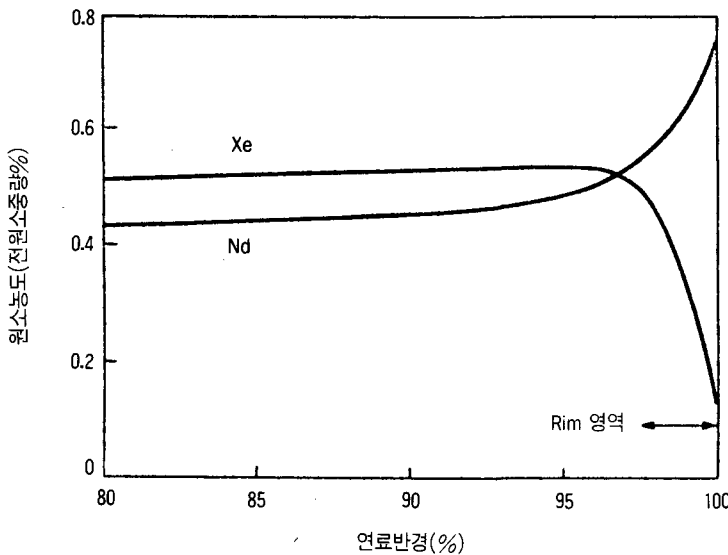
림층의 생성 매커니즘 연구를 위해 독일의 超우라늄연구소에서는 입자가속기로 UO₂에 크세논 이온을 주입해 연구하고 있다. 주입량



이 어떤 값을 초과하면 림부에 비슷한 조직이 생긴다는 것이 확인되었다. 림부에서는 플루토늄이 연소하기 때문에 FP 중에 귀금속원소 성분이 많아지고 림부의 산소농도가 높아져 특성에 영향을 미칠 가능성이 거론되고 있다.

최근 고속로에서 고연소도까지 사용한 MOX 연료의 펠릿과 피복관의 JOG(경수로 연료의 갭에 상당한다. 그러나 고속로의 경우 갭부에서의 FP의 축적이나 移行에 의해 그 크기가 변동한다)에 대한 연구를 통해 70~90Gwd/t에서 外周部로부터 FP 가스 방출이 크게 일어나 경수로의 림조직과 비슷한 미세조직이 형성된다는 것이 보고되어 있다. 이것은 앞에서 말한 고속로의 고연소도 펠릿 外周部로부터의 FP 가스 방출에 해당한다. 이같은 사항은 경수로 연료의 초고연소도화의 경우 참고가 될 것이다.

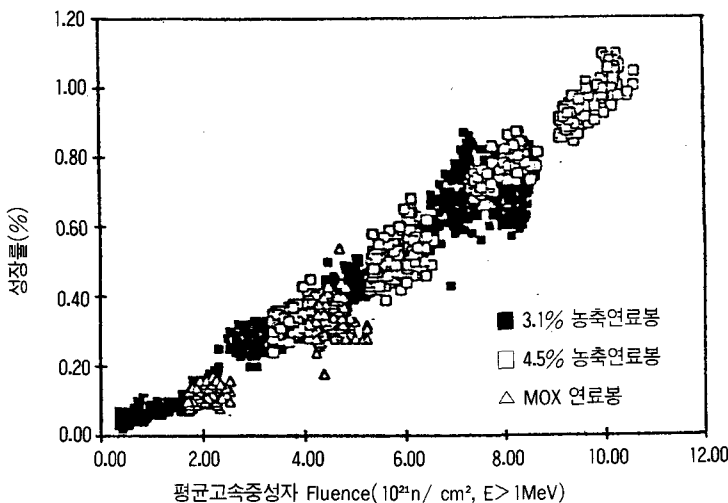
현재 예정돼 있는 정도의 경수로의 고연소도화에서는 림부가 얇기 때문에 그 효과가 별로 문제되지 않지만 초고연소도를 고려하는 경우에는 더 연구할 필요가 있다.



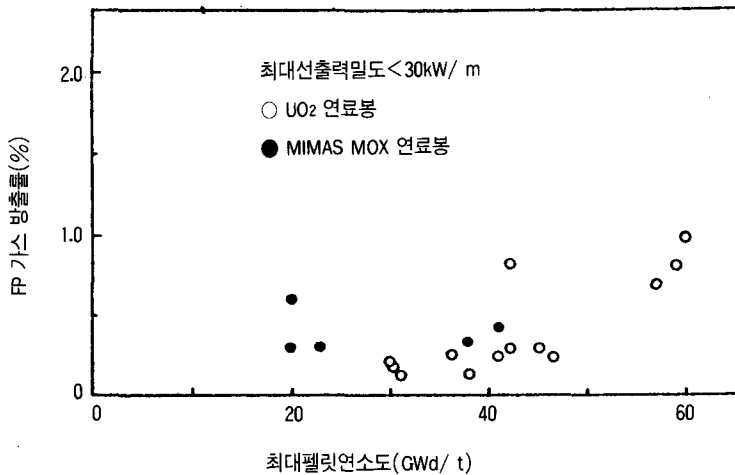
〈그림 8〉 〈그림 7〉에 보인 연료 펠릿내의 Xe의 Rim부에서의 감소. Nd는 연소도분포를 나타낸다.

연료변형 및 PCI

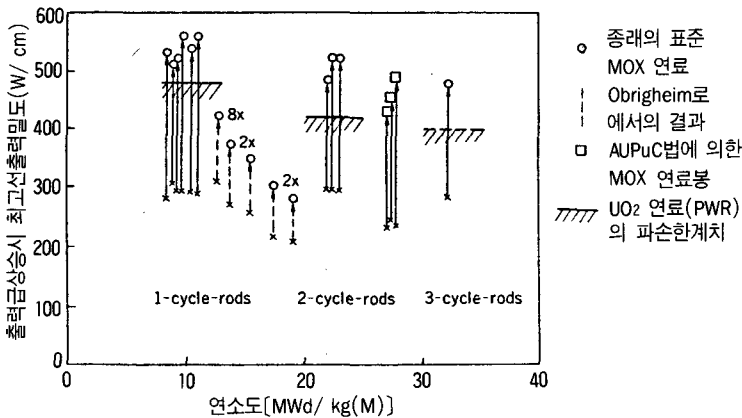
노내에서 연료봉에 발생하는 변형과 관련된 사항 중 주목되는 것은 연료봉 照射成長, Creep Down (PWR) 및 PCI이다. PWR 연료봉의 조사성장의 예를 〈그림 9〉에 보였다. 그림 중 흰 표시는 고연소도를 위해 농축도를 4.5% 높인 것이다. 이같은 데이터는 설계코드 검증에 이용되고 있다. BWR에서는



〈그림 9〉 연료봉의 성장 예(프랑스)



〈그림 10〉 BR 3으로 조사한 UO₂ MIMAS法에 의한 MOX 연료봉의 FP 가스 방출률



〈그림 11〉 MOX 연료봉의 출력 급상승에 의한 PCI 파손한계치의 UO₂ 연료봉과의 비교(독일)

재결정 燒鈍材를 사용하기 때문에 조사성장은 적다. 최근 이같은 燒鈍材는 고속중성자 Fluence가 약 $5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ (30GWd/t 정도)를 넘으면 성장이 가속된다고 알려져 왔지만 그 양이 적어 연구대상에 지나지 않는다. 또 집합체의 성장 데이터도 많이 수집돼 있어 설계코드 검증에 이용되고 있다.

Creep Down에 관해서는 30~40GWd/t(국부연소도) 사용후 펠릿과 접촉한 후에는 피복관 지름이 커진다는 보고, 5사이클(58GWd/t 국부연소도) 후에도 反轉하지 않는다는 보고 등이 있다. 이것은 피복관의 Creep 특성, 갭 크기, 연료봉 출력, 펠릿의 燒鈍특성 등에 좌우되기 때문이다.

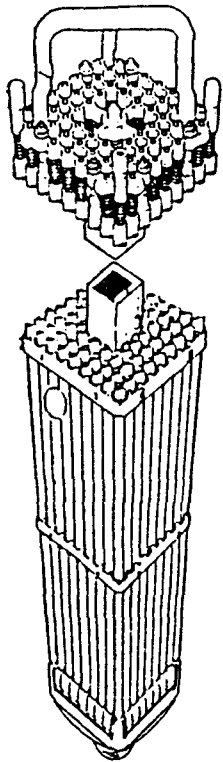
출력 급상승의 PCI에 관해서는 지르코늄 라이너관이 BWR에서는 실용화돼 PCI에 의한 파손은 사실상 없어졌다. 또 PWR에서는 전부터 PCI 파손은 거의 일어나지 않고 있지만 피복관의 집합조작을 조정함으로써 耐PCI 성능을 높이고 있다.

또 출력 사이클에 의한 펠릿과 피복관간의 역학적 상호작용의 가속효과는 볼 수 없었다.

MOX 연료

경수로용 MOX 연료는 펠릿을 제외하고는 UO₂ 연료와 같다고 볼 수 있다. 그러나 MOX 펠릿 제조 공정에서는 PuO₂와 UO₂를 미시적인 수준에서 균일하게 혼합할 필요가 있다. 플루토늄 농도가 높은 부분(Plutonium Spot)은 그 농도가 극도로 높을 경우에는 재처리시 不溶解 잔재가 많아지던가 Plutonium Spot의 연소가 국부적으로 커져 FP 가스 방출 증대나 반응도 이상시에 국부과열을 가져올 가능성이 있다.

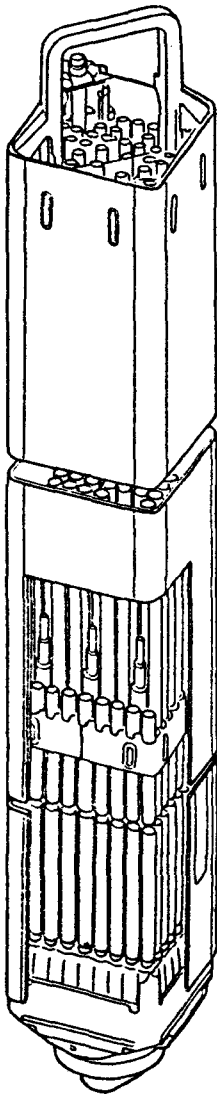
MOX 펠릿 제조법은 UO₂ 펠릿의 경우와 거의 같지만 플루토늄과 우라늄을 용액단계에서 혼합하는 방법과 UO₂ 분말과 PuO₂ 분말을 Ball Mill로 혼합하는 방법이 있다. 전자의 경우는 動燃의 마이크로波加熱直接脫硝法과 지멘스社의 AUPuC法이다. 動燃에서는 이 방법으로 제조한 混合轉換粉을 UO₂ 분말과 Ball Mill에서 분쇄혼합하지만 지멘스社에서는 단순한 혼합을 하고 있다. 후자에 대해서는 B



〈그림 12〉 9×9-9 QA형
연료집합체
(Siemens/ KWU社)

elgonucleaire社의 MIMAS法, 지멘스社의 OCOM社, 프랑스의 MIGRA法 등이 있다. 모두 Ball Mill 등에 의한 철저한 혼합이 기본이 돼 있다.

MOX 연료의 플루토늄 함유량은 몇% 정도의 것이 많이 시험되고 있다. 플루토늄 농도가 너무 높지 않다는 것과 PuO₂와 UO₂가 모



〈그림 13〉 9×9형
연료집합체(GE社)

두 固溶되기 때문에 열전도나 Creep, 확산 등을 제외한 MOX 연료의 물리적 특성은 UO₂ 연료와 그다지 다르지 않다.

MOX 연료의 照射舉動에 있어서는 구식 제조법에 의해 Plutonium Spot가 컸던 것은 UO₂ 연료보다 FP 가스 방출이 많았다. 현재의 제조법에서는 MOX 연료의

FP 가스 방출은 UO₂ 연료와 같은 가 약간 큰 경우가 많다. 〈그림 10〉에 BN社의 데이터를 보였다. 또 MOX 펠릿의 Creep 속도는 UO₂ 펠릿보다 높기 때문에 MOX 연료의 PCI 耐性은 UO₂ 연료보다 나은 것으로 알려져 있다. 이것은 〈그림 11〉에 나타나 있다.

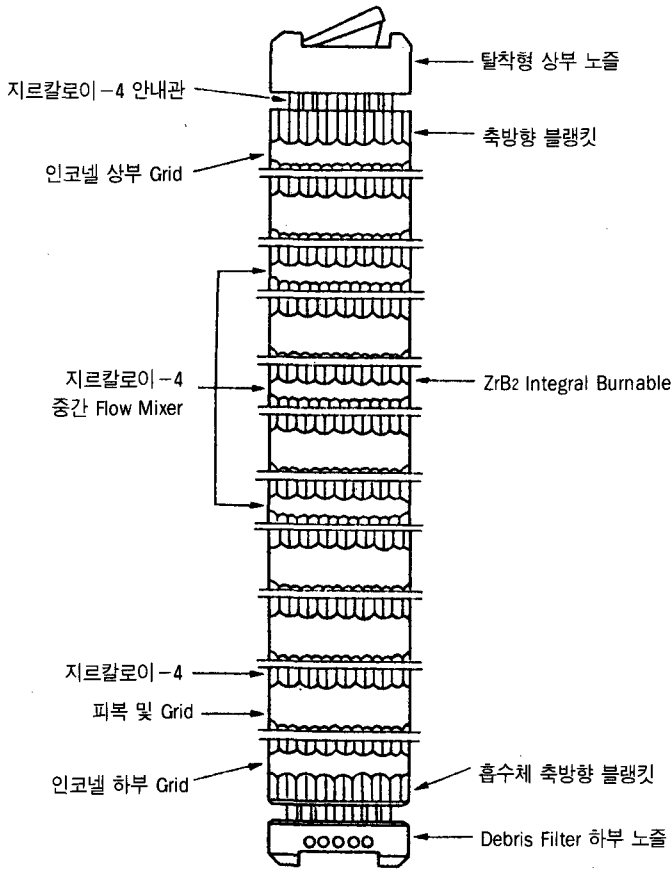
따라서 MOX 연료의 조사거동은 UO₂ 연료와 별로 다르지 않지만 플루토늄의 고농도화나 고연소도화를 시행하는 경우에는 데이터 축적이 필요하다고 생각된다.

신형 연료의 개발동향

1. BWR 연료

지멘스/KWU社는 1975년부터 9×9형 연료를 개발하고 있다. 그 목적은 주로 線출력밀도를 낮추는 것으로 8×8형에 비해 약 20% 낮추게 돼 있다. 9×9-1(중양의 연료봉 1개를 水棒으로 대치)에서 9×9-5를 거쳐 중앙부의 3×3 배치로 물 Channel로 대치한 9×9-9Q가 개발되고 있다. 또 열수력 특성을 개선하기 위해 Ring Spacer를 사용한 9×9-9QA가 개발되었다. 이 개발의 일부는 日本의 原子燃料工業(株)와 공동시행하고 있는 것으로 보고돼 있다. 이 집합체의 외관은 〈그림 12〉와 같다.

1991년의 ANS/ENS 회의에 보고된 실적에서는 연료집합체 약 3,500개, 최고연소도 50Gwd/t(집합체)로 되어 있다. 또 최근 10×10형(10-9Q), 11×11형(11-9Q)이 개발돼 있다. 참고로 9×9형 연료봉의 외경은 11mm, 11×11형에서



〈그림 14〉 VANTAGE 5형 PWR 연료집합체(웨스팅하우스사)

는 9.0mm이다. 또 PWR 17×17 연료봉의 외경은 9.5mm이다.

GE社에서는 고연소도의 연료집합체로 日本에서도 최근 사용하기 시작한 大徑 水棒, 圖型 Spacer 등을 특징으로 하는 2단계형 연료(GE 10형)를 실용화하고 있지만 새로운 설계로 9×9형과 10×10형이 있다. 9×9형의 최신형은 GE-13이라고 불리우며 74개의 연료봉과 水棒(복수)으로 돼 있다.

집합체의 외관은 〈그림 13〉과 같다. 그림에서도 알 수 있듯이 部分

長(Part Length) 연료봉도 사용되고 있다. 또 GE社에서는 9×9형 연료의 LUA(先行使用 集합체)를 많은 발전소에서 사용하고 있다.

ABB Atom社에서는 지금까지 사용해 온 SVEA 연료(集합체 내부를 4분할해서 분할境界부분에 靜水부분을 배치한 水十字 연료)의 4×4 격자로 바꾸어 SVEA-96이라고 부르는 5×5 격자를 사용한 연료를 개발하고 있다. 전자의 연료봉 외경은 11.63mm, 후자의 그것은 9.62mm이다.

2. PWR 연료

웨스팅하우스社에서는 고연소도 대책으로서 전부터 VANTAGE-5라고 부르는 집합체를 개발해 왔다. 이 집합체의 특징은 〈그림 14〉에 나타나 있다. 개선점으로는 열 전달 개선을 위한 중간 Mixer Grid, Debris 제거를 위해 구멍수를 늘리고 구멍 크기를 작게 한 Bottom Nozzle, 펠릿 표면에 ZrB₂를 코팅한一體型 Burnable Absorber 등이 있다. 또 최신형의 VANTAGE+형에서는 신형 피복관 ZIRLO를 사용하고 있다.

맺음말

사용후연료 발생량의 감량은 여러가지 의미에서 현대의 필요성에 부합되기 때문에 앞으로는 더욱 더 고연소도화가 추진될 것으로 보인다.

여기서는 경수로 연료의 고연소도화 및 MOX 이용에 관해 국제적인 관점에서 현재의 기술을 살펴봤지만 현재 日本에서 계획하고 있는 정도라면 연료의 건전성 확보에는 문제가 없을 것으로 생각된다.

그러나 더욱 신뢰성을 높이기 위해 新합금 피복관이나 펠릿의 개량 등이 이루어지고 있다. 이같은 일은 앞으로 한층 더 연소도를 높일 경우에도 도움이 되는 것이다. MOX 연료에 대해서는 앞으로 플루토늄 농도를 높여 고연소도화하는 경우에는 더욱 충실한 데이터를 갖추는 것이 바람직하다. (日本原子力工業 5月號)■