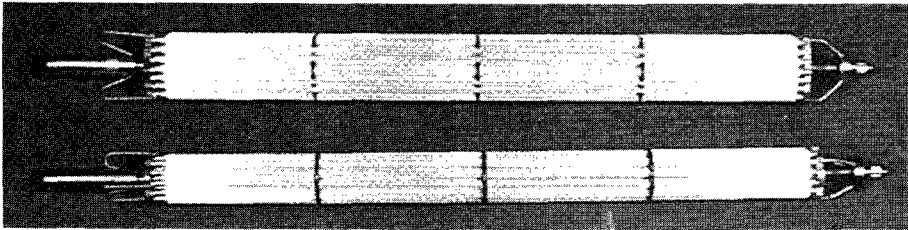


연구로용 핵연료 분말재료의 개발



하나로에 장착된 핵연료집합체

연

연구용 원자로에서 사용하는 핵연료는 과거에 90% 이상의 농축도를 갖는 우라늄을 원료로 U-Al, UZrH₂ 등의 합금을 만들어 사용하였다.

또한 플루토늄을 생산할 목적으로

가스냉각핵연료에서는 천연우라늄을 원료로 핵연료를 만들어 사용하기도 하였다.

이와 같은 핵연료는 핵확산금지 관점에서 보면 전용 가능성이 매우 큰 위험한 것이었다.

연구용 원자로의 사용목적에 입각하여 보면 단위 부피당 U²³⁵의 함량이 높아야 높은 중성자속을 얻게 되고, 또 이를 위해서는 90% 이상의 고농축 우라늄(Highly Enriched Uranium, 이하 HEU로 칭함)을 핵연료의 원료로 사용하는 것이 당연하다.

그러나 90% 이상 고농축우라늄을 사용하도록 하여 핵물질전용이 일어나도록 방지할 수는 없다.

이러한 이유에서 핵확산금지조약구에서는 핵물질 전용 가능성이 전혀 없도록, 연구용 원자로에서 사용하는 핵연료에서도 U²³⁵의 농축도가 20%

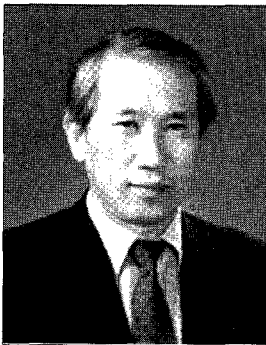
를 넘는 원료를 사용할 수 없도록 강제권고한다는 방침을 수립하였다.

이와 같은 강제권고사항은 전세계 어떠한 원자로도 예외일 수는 없다.

그 예로서 우리나라 또한 한국원자력연구소에 있는 30MW급 연구용 원자로 「하나로」에서도 U²³⁵가 20% 이하인 우라늄(Low Enriched Uranium, 이하 LEU로 칭함)을 원료로 하는 핵연료를 사용하고 있다.

그리고 핵확산금지조약기구와 연계하여 상기 정책을 뒷받침하기 위해 ACDA(Arms Control and Disarmament)와 RERTR(Reduced Enrichment for Research and Test Reactors) 기구가 운영되고 있다.

RERTR 기구에는 40여개국에 가담하여 전세계 모든 연구용 원자로에서 LEU를 사용하도록 체계적인 전환을 추진중이다.



국 일 연

한국원자력연구소
핵연료연구개발책임자

RERTR의 선행조건은 원자로 내에서 LEU를 사용하면서도 과거 U^{235} 90% 이상의 핵연료를 사용하였을 때와 같거나 또는 더 높은 중성자속을 얻을 수 있을 것인가 하는 문제이다.

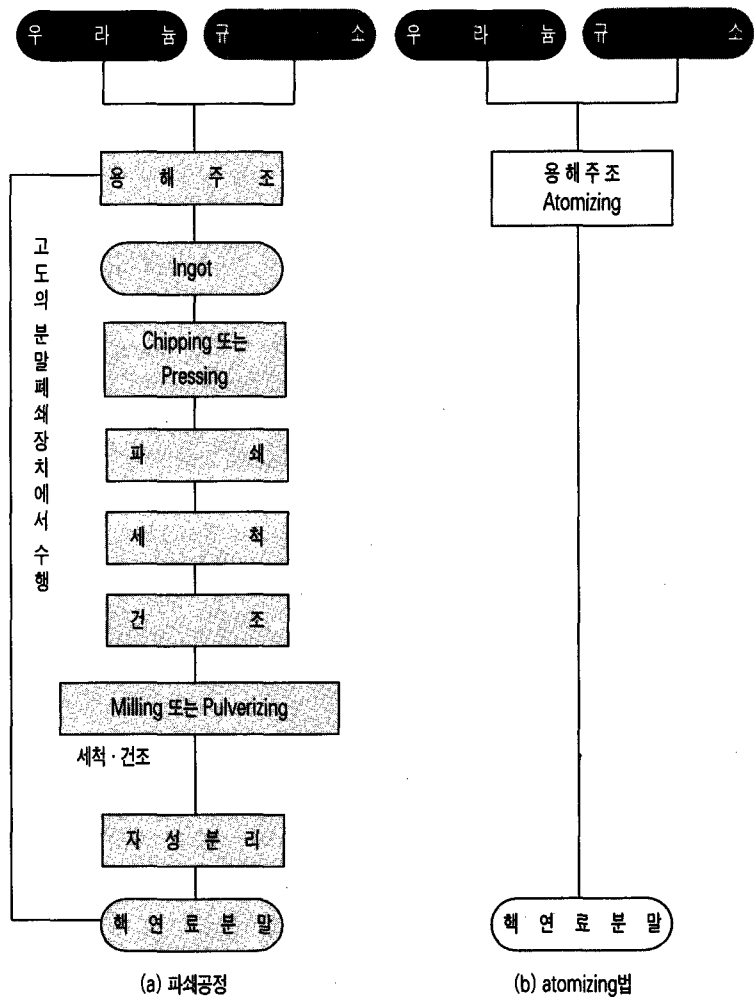
이러한 핵연료를 개발하기 위해 1978년 이후 RERTR에 참여한 모든 연구소들이 노력하고 있다.

그간의 개발결과를 보면 UC, UN, U-Mo, U_3Fe , U_3Mn , U_3O_8 , U_3SiAl -Al 분산형 핵연료, U_3Si - Al_2 분산형 핵연료, U_3Si_2 -Al 분산형 핵연료 등이 대표적이고, 최근에 사용되는 것은 U_3Si -Al 분산형 핵연료이다.

LEU를 연구용 원자로에서 사용할

〈표 1〉 LEU를 연구용 원자로에서 사용할 수 있도록 하는 핵연료의 재료요구조건

1. 단위부피당 U^{235} 의 함량이 높아야 한다.
2. 중성자 조사에 대하여 안전성이 있어야 한다.
3. 중성자 포획 흡수계수가 작아야 한다.
4. 고온수에 대하여 내식성이 우수하여야 한다.
5. 기지재료(알루미늄)와 상호반응이 작아야 한다.
6. 핵 분열 생성가스가 핵연료 입자 내에 포집될 수 있어야 한다.
7. 핵분열 발생열이 쉽게 방출되어 핵연료 중심온도와 표면온도의 차이가 작도록 열전도도가 우수하여야 한다.
8. 높은 온도영역까지 상변태가 일어나지 않고 안전성이 높은 물질이어야 한다.
9. 핵분열 생성가스에 의한 핵연료의 부풀음 (swelling)을 수용할 수 있도록 강도를 유지하여야 한다.



〈그림 1〉 과거 파쇄방법과 새로 개발한 atomizing법의 공정비교

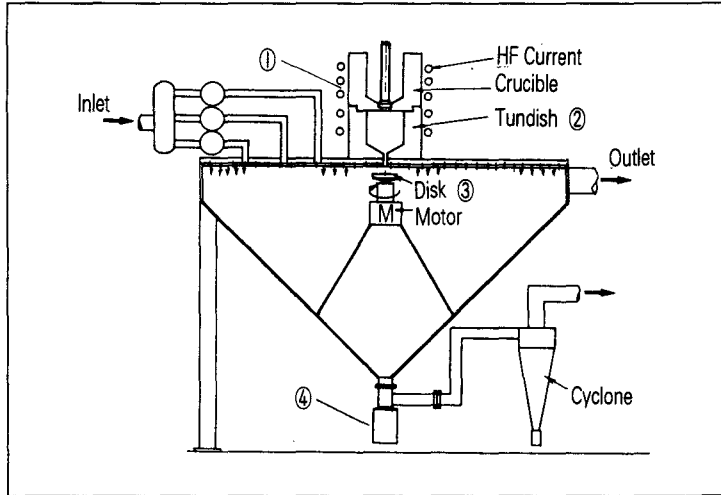
수 있도록 하는 핵연료가 가져야 할 재료의 요구조건은 〈표 1〉과 같다.

이와 같은 조건을 만족하는 것으로 U_3Si 또는 U_3Si_2 -Al 분산형 핵연료가 가장 적합하다고 RERTR에서는 결론을 내리고 있다.

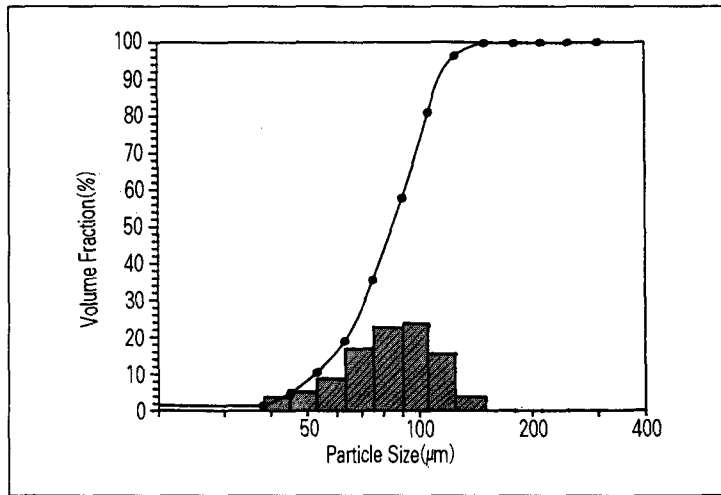
여기서 U_3Si 또는 U_3Si_2 -Al 분산형

핵연료라 함은 U_3Si_2 또는 U_3Si 분말 입자가 Al(알루미늄) 금속기지 내에 골고루 분산되어 있는 형태의 핵연료를 말한다.

그리고 U_3Si 및 U_3Si_2 분말입자는 우라늄과 규소의 합금을 만들고 스텐을 파쇄하여 요구하는 크기의 분말



〈그림 2〉 Atomizing 장치의 개략도



〈그림 3〉 Atomizing법으로 얻은 분말 크기 분포

U₃Si₂-Al 분산형 핵연료는 U-loading(단위 부피당 U²³⁵의 함량)이 최고 4.8g-U/cc 이상으로 만들지 못하며, 높은 중성자속을 특별히 요구하는 연구로는 LEU 사용이 불가능하여 과거에 사용하던 UAlx형 HEU 사용을 계속하고 있다.

실제로 고중성자속을 요구하고 있는 프랑스·독일·일본 등 많은 연구용 원자로 보유국들은 LEU로 전환을 기피하고 있고 RERTR에서는 이 문제가 논란의 대상이 되고 있다.

RERTR을 적극적으로 지원하고 있는 미국에서도 ANS(Advanced Neutron Source)라는 350MW급의 대형 연구용 원자로를 만들고자 하였으나 LEU를 사용해서는 도저히 요구하는 중성자속을 얻을 수 없으므로 미국 국회의 승인을 얻지 못해서 중단된 상태이다.

따라서 RERTR을 중심으로 U-loading을 높이는 방법을 세계적으로 연구하고 있다.

한국원자력연구소에서는 1987년부터 RERTR에 참가하여 핵연료 개발을 꾸준히 추진하여 왔다.

특히 한국원자력연구소에 설치가동(1995년 2월 28일자 임계도달) 중인 연구용 원자로 「하나로」에서 사용하는 핵연료가 RERTR에서 제시한 LEU U₃Si-Al 분산형 핵연료이다.

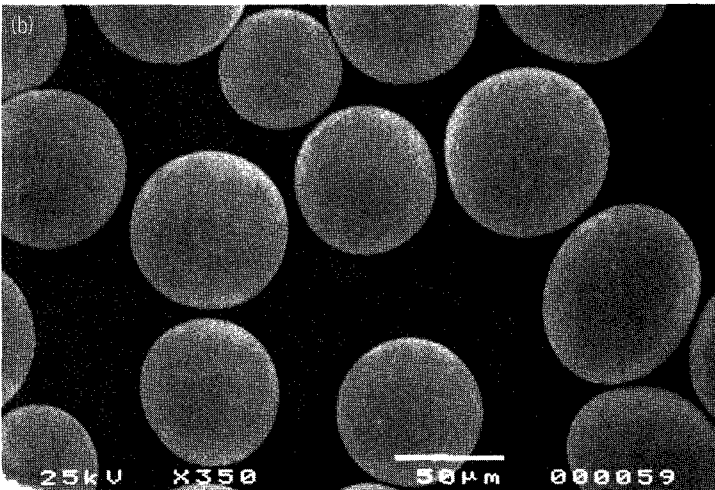
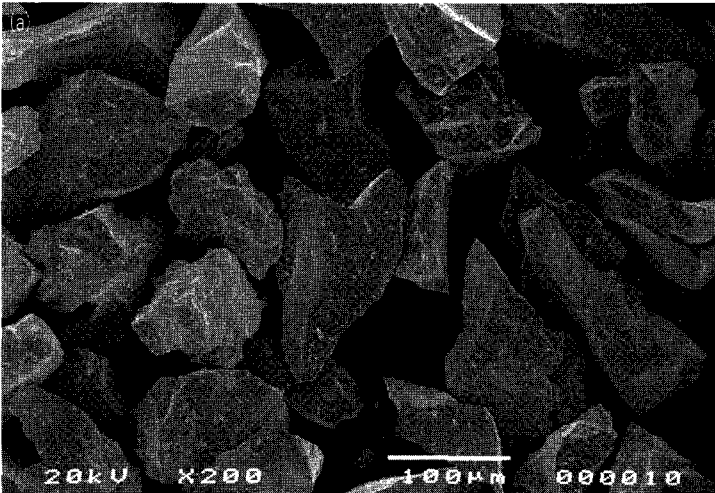
그러나 기존의 제조공정은 파쇄·분쇄공정이 너무 지저분하고 비경제적이며 핵연료의 성능도 요구하는 바

로 만들어 사용하고 있다.

U₃Si는 봉상핵연료(우리나라 또는 캐나다에서 사용)에서 사용하고, U₃Si₂는 판상핵연료(미국을 위시한

대부분)에서 사용하나 U₃Si를 판상으로 사용하면 부풀음이 현저하여 사용이 불가능하다.

그러나, RERTR에서 권고한



(그림 4) (a) 종래 파쇄공정으로 만든 분말(X 200)과 (b) 한국원자력연구소에서 특허(X 350) 등 특한 atomizing법으로 만든 분말의 비교사진

대로 얻지 못할 것이 예상되어, 새로운 방법으로 핵연료를 개량하기 위하여 각종 노력을 기울였다.

많은 실패와 고초 끝에 atomizing(초고속회전 원심분무 분말미립화)법으로 U_3Si 미립 구형분말을 얻

는데 성공하였다.

이어서 U_3Si 보다 용융점이 $200^{\circ}C$ 정도 높은 U_3Si_2 미립 구형분말을 얻는데 성공하였다.

Atomizing 방법으로 얻은 미립 구형분말은 유동도가 좋고 작은 압력으

로 쉽게 성형되며 높은 U-loading을 얻는데 무리가 없다.

현재까지 $6.1g-U/cc$ 이상의 U-loading을 갖는 봉상 U_3Si-Al 분산형 핵연료를 얻었다.

이는 종래 파쇄분말법으로 얻은 $4.3g-U/cc$ 의 U_3Si-Al 분산형 핵연료 결과와 비교하면 약 40% U-loading 향상을 가져온 것을 알 수 있다.

따라서 atomizing법으로 얻은 미립 구형분말로 U_3Si / U_3Si_2-Al 분산형 핵연료를 만듦으로써 RERTR에서 추구한 U^{235} 20% 이하의 농축도의 우라늄으로 핵연료를 만들어도 과거의 U^{235} 90% 이상의 농축도 우라늄 핵연료보다 높은 중성자속을 확실히 얻을 수 있게 된 것이다.

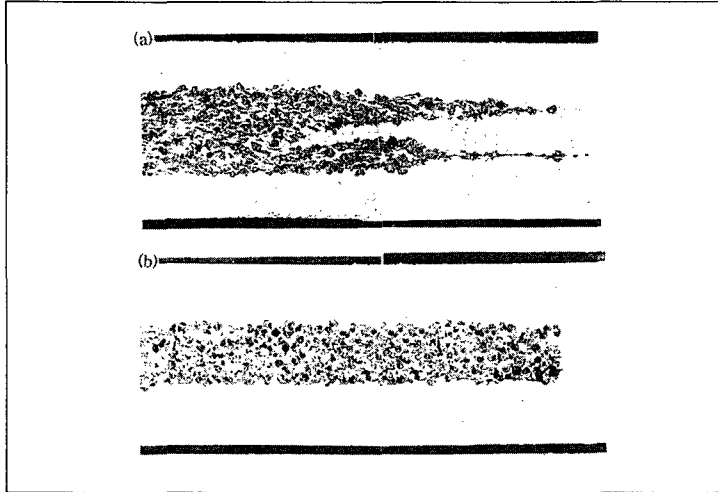
그리고 프랑스 및 일본 등의 연구용 원자로 보유국이 LEU로 전환하는 것과 미국의 ANS 프로그램 중단에 대한 대책이 쉽게 해결된 셈이다.

뿐만 아니라 U_3Si 또는 U_3Si_2 분말을 원자로에서 요구하는 크기를 맞추기 위해서는 chipping, crushing, pulverizing 등 매우 힘들고 지지분환공정을 거치는데, 이때 철분 등 불순물이 대량 혼입되어 세척과 자성분리 등 부수공정이 뒤따르게 된다.

이와 같은 노력에도 불구하고 불순물은 상당량 잔류하여 핵연료성능에 악영향을 가져온다.

또한 공정이 복잡하여 제조원가가 비합리적으로 높다.

더욱이 파쇄과정중에 우라늄합금이



(그림 5) 4.3g-U/cc U-loading의 성형된 분산형 핵연료에서 파쇄분말 분산상태(a)와 atomizing 분말 분산상태(b)의 비교

높은 산화성을 갖고 있으므로 발화가
가능성도 높다.

실제로 캐나다, 미국 등은 이러한
경험을 갖고 있다.

파쇄공정으로 얻은 분말은 계속
sieving, 파쇄, sieving을 반복하여,
요구되는 크기의 분말을 구분하여 나
가는데, 물질수지를 맞추어 보면
20% 정도가 회수되지 못하고 재용해
하여야 되는 정도로 비경제적이다.

이에 반하여 atomizing법에서는
구형 미립분말을 용탕에서 직접 얻으
므로 많은 파쇄공정·부수공정이 필
요없고 단일공정으로 요구되는 크기
를 atomizing 변수조절로 쉽게 얻을
수 있다.

물론 다른 물질과 접촉할 기회가 없
으므로 높은 순도의 제품을 한번에 얻
는 장점이 있다.

또한 atomizing 변수조절로 요구
하는 크기의 분말을 한번에 얻으므로
물질수지도 96% 정도의 높은 수준을
얻고 있다.

이와 같이 제조원가의 대폭 절감과
고품질의 분말제품을 얻는 장점을 가
지고 있다.

더욱 중요한 장점은 atomizing으
로 얻은 미립 구형분말의 U_3Si / U_3Si_2-Al 핵연료는 높은 열전도도와
낮은 열반응도를 갖게 되어, 원자로
내에서 더욱 높은 연소도까지 매우 안
정하게 연소할 수 있다는 것이다.

현재까지 실험결과에 의하면 15%
정도의 열전도도 향상과 35% 정도의
열반응도 감소를 얻었다.

이로써 Uranium Silicide-Al 분산
핵연료에서 노내성능의 향상이 기대
된다.

분산핵연료제조기술 및 특징

1. 분말공정의 단축

중래의 파쇄방법으로 얻는 분말제
조공정과 한국원자력연구소에서 개발
한 미립 구형분말 제조공정을 (그림
1)에 도시하여 비교하였다.

(그림 1)에서 보는 바와 같이 과거
에는 매우 복잡한 공정을 거쳐 핵연료
분말을 얻었다.

즉 조파쇄와 미분쇄를 거쳐 분말을
얻는데, 우라늄합금의 발화성이 높아
서 이를 방지하기 위해 발화방지유와
절삭유를 주입시키며 많은 불순물이
혼입되어 세척과 건조작업을 반복하
여야 한다.

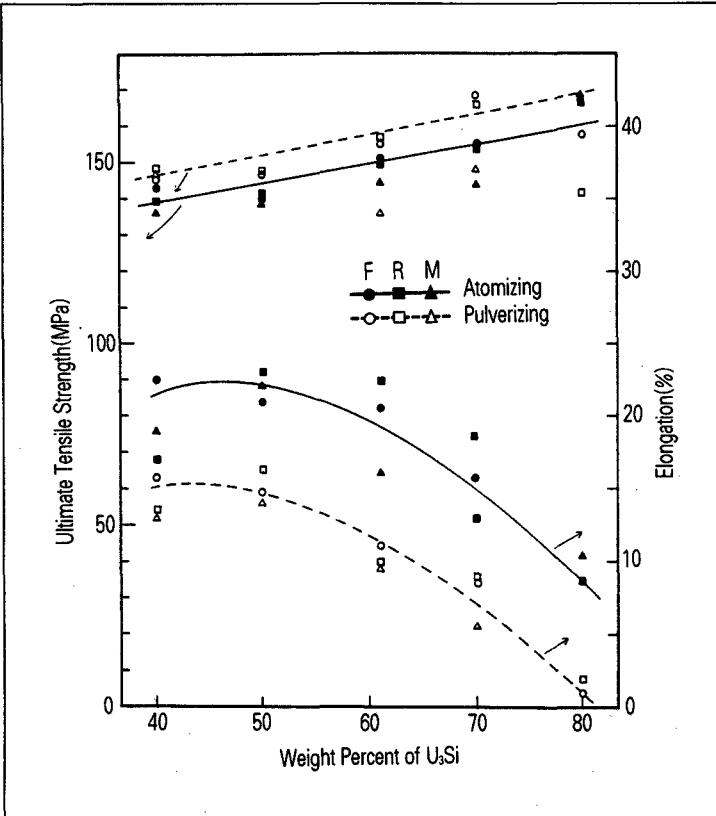
그리고 Uranium Silicide가 매우
질기고 단단하여 껍질을 벗기거나 파
쇄하는데 매우 힘들어서, 분말화 작업
도중에 많은 공구와 접촉 부품 마모로
철분을 포함한 공구 및 기기 마모 합
금성분 등의 불순물이 대량 혼입된다.

이를 자성분리법으로 제거하고 있
으나 철분마저도 완전히 제거하지 못
하는 실정이다.

이와 같이 새로운 atomizing법을
도입하여 atomizing법으로 많은 복잡
한 공정을 단일화하여 공정 경제성을
대폭 증가시키고 합금분말의 순도를
크게 향상시켰다.

2. Atomizing의 간략한 소개

Atomizing 장치의 개략도는 (그림
2)와 같다.



(그림 6) 상온에서 U₃Si 분말 분율의 변화에 따른 두 종류의 fuel meat의 인장성질

U₃Si / U₃Si₂는 우라늄과 규소를 요구하는 함량으로 장입하여 유도로 ①에서 필요한 온도로 용해되고, 용탕은 tundish와 nozzle을 통해 요구되는 속도로 rotating disk에 주입되고, 주입된 용탕은 He/Ar을 분사하면서 20,000~40,000rpm의 고속회전 disk ③으로 원심분사되면 용탕분말이 분사비행하고, atomized 분말 제품은 개폐 box ④에 포집된다.

3. 분말크기의 조절

Atomizing에서 분말의 크기는 다 음 식과 같은 변수로 조정하게 된다.

$$d = 3.65 \cdot 10^6 \frac{1}{\omega^{0.96}} \cdot \left(\frac{r}{\rho}\right)^{0.43} \cdot \left(\frac{Q}{D^{0.64}}\right)$$

ω : 원반의 각속도

r : 용탕의 표면장력

ρ : 용탕의 밀도

Q : 용탕공급유량, D : 원반직경

파쇄방법으로 만드는 분말은 milling이나 pulverizing을 거친 후,

sieving을 통해서 요구하는 크기 범위 (45 μ m~150 μ m)의 분말을 골라내고, 요구범위보다 작은 분말은 다시 재용해하고, 요구범위보다 큰 분말은 다시 분쇄해서 sieving을 한다.

따라서 분쇄방법은 재용해하는 분율이 매우 크게 되고 이 과정에서 불순물이 합금성분으로 핵연료에 직접 투입되어 핵연료특성을 저하시킨다.

뿐만 아니라 요구범위에 맞는 분말을 고르기 위해 분쇄, sieving 공정을 반복하는 작업 경제성 저하요인을 가져오고 있다.

이에 반하여 atomizing법은 atomizing 변수(용탕 주입속도, 냉각가스 주입속도, 회전체 속도) 조절로 분말크기를 마음대로 조절할 수 있어 단 1회에 요구하는 크기의 수율을 96% 이상 맞출 수 있다.

(그림 3)은 이러한 분말크기 분포를 보여 주고 있다.

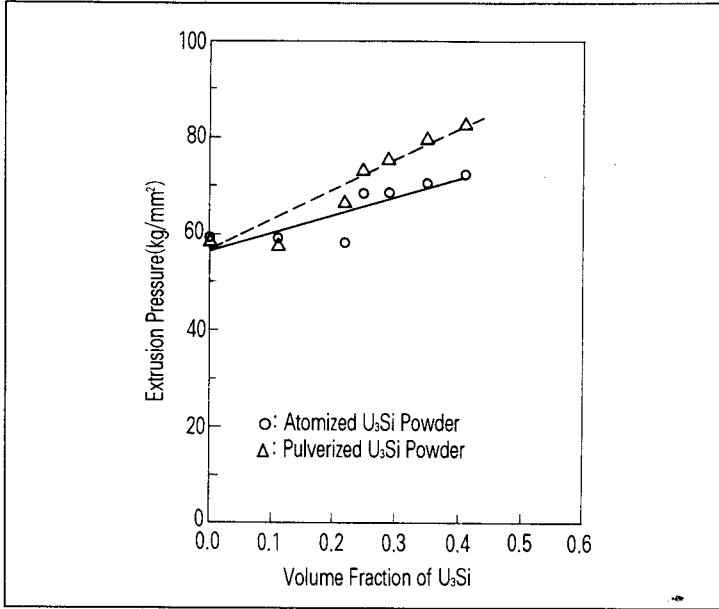
4. 분말형상

(그림 4)는 파쇄공정으로 만든 분말과 atomizing법으로 만든 분말을 비교·확대한 사진이다.

그림에서 보듯이 파쇄공정으로 만든 분말은 부정형으로 형태와 크기가 일정하지 않다.

그러나 atomizing법으로 만든 분말은 구형인 형태와 크기도 요구하는 대로 일정한 상태이다.

이와 같은 분말의 크기와 형태의 인자는 핵연료의 성능에 지대한 영향을



〈그림 7〉 U₃Si 입자의 다른 형태에 대해 U₃Si 분말분류에 따른 압출압력의 변화

준다.

5. U-loading 향상

분말의 형태는 첫째로 분말성형에 큰 영향을 준다.

〈그림 5〉는 4.3g-U/cc(70w/o U₃Si) U-loading을 갖는 Al 기지내 분말분포를 보이고 있다.

〈그림 5〉에서 보듯이 파쇄분말은 꼬리부분에서 억지로 피복재 알루미늄을 뚫고 나오거나 dog-bone(개뼈) 형태로 남는 등 핵연료형을 유지할 수가 없다.

반면 atomized 분말은 피복재의 건전성을 그대로 유지한 채 핵연료형을 제조할 수 있다.

뿐만 아니라 4.8g-U/cc U-loading 이상으로 U₃Si₂ 파쇄분말은 전혀 성형

할 수가 없다.

〈그림 6〉은 두 분말의 기계적 특성을 비교한 것이다.

〈그림 7〉에서 보듯이 압출압력의 차이는 현저하며 atomizing 분말은 6.1g-U/cc 이상으로 쉽게 성형이 되나, 파쇄분말은 성형이 되지 못한다.

참고로 〈그림 6〉에서 나타난 기계적 특성비교에서도 atomizing 분말은 6%의 연성차이를 보이고 있다.

6. 열전도도 향상

분말의 형태는 둘째로 핵연료 성형체의 분말 배위에 큰 영향을 주고 분말배위는 열전도도에 영향을 준다.

〈그림 8〉은 두가지 분말의 성형체의 성형방향과의 상관관계를 보여주

고 있다.

이 결과는 atomizing 분말 핵연료의 열전도도가 파쇄분말 핵연료보다 높은 원인을 제공하고 있다.

실제로 atomizing 분말 핵연료의 열전도도가 열전달 방향에서 파쇄분말 핵연료보다 약 15% 높게 나타난 결과를 얻었다.

〈그림 8〉에서 보듯이 파쇄분말은 형태의 특성상 알루미늄과 혼합 분산성형시에 분말의 긴 방향이 회전하면서 성형방향으로 배위하게 된다.

그러나 atomized 분말은 구형이므로 방향성이 있을 수 없고, 이에 따라 성형방향과 전혀 상관 없어 분말 배위는 방향성을 갖지 않는다.

분말배위와 방향성은 핵연료의 열전도도에 영향을 준다.

핵연료의 열전도는 성형방향과 직각으로 이루어진다.

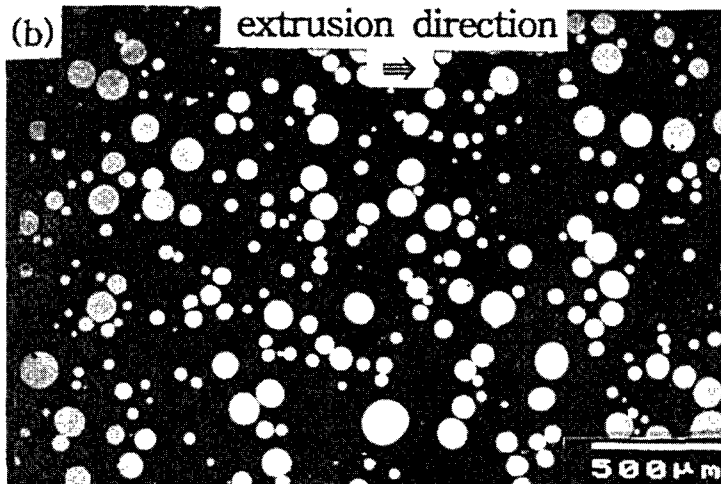
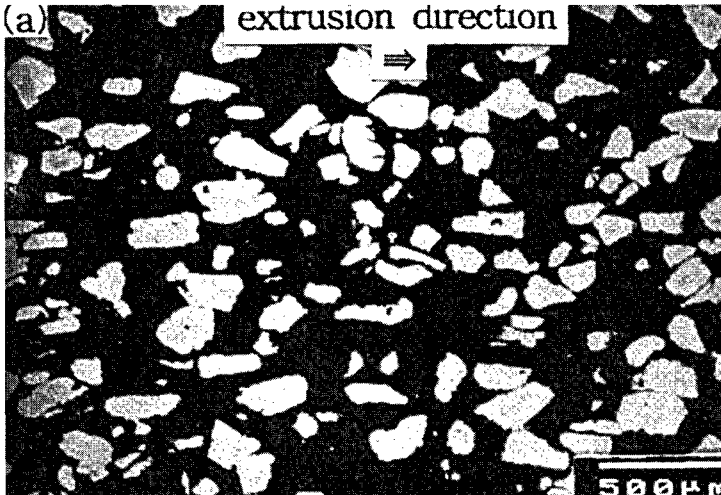
따라서 성형방향과 직각으로 열전도를 측정하였고, 두가지 분말의 핵연료의 열확산도를 〈그림 9〉에 표시하였다.

〈그림 9〉에서 보듯이 atomizing 분말로 만든 핵연료의 열확산도가 파쇄분말 핵연료보다 약 15% 높게 나타났다.

7. 열반응도의 감소

U₃Si / U₃Si₂-Al 분산형 핵연료의 안전성에 큰 영향을 주는 요인은 핵연료 입자-알루미늄 계면의 열반응도인 것으로 잘 알려져 있다.

특히 U₃Si-Al 분산형 핵연료에서 열



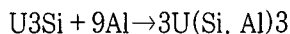
(그림 8) 알루미늄 기지 내에서 두가지 분말의 성형방향과의 배위상태 비교사진 (a) 파쇄분말 분산 fuel meat (b) atomizing 분말 분산 fuel meat

반응물은 U_3Si 분말 내부에 발생·성장한 핵분열 생성가스의 기공과 복합작용으로 일정한 연소도 이상에서 핵연료 부풀음에 상승효과를 가져온다.

이와 같은 급작스런 부풀음 상승작용을 break-away swelling이라고 부

르고, 이러한 상황은 핵연료의 건전성에 심각한 영향을 미친다.

U_3Si-Al 계면 분열반응식은 다음식과 같이 표현된다.



여기서 생성된 반응물은 급격한 부

피팽장을 가져오고 이러한 부피팽창은 핵연료 입자내의 핵분열 생성물과 복합적으로 부풀음에 상승작용을 한다.

따라서 열반응도가 감소하면 그만큼 break-away swelling의 가능성은 감소되고, 이 결과는 연소 안전성에 큰 향상을 가져온다.

(그림 10)은 두가지 다른 분말을 사용한 핵연료에서 열반응도를 측정 한 결과이다.

(그림 10)에서 보듯이 atomizing 핵연료는 파쇄분말보다 약 35%의 열반응도가 낮아진 것을 알 수 있다.

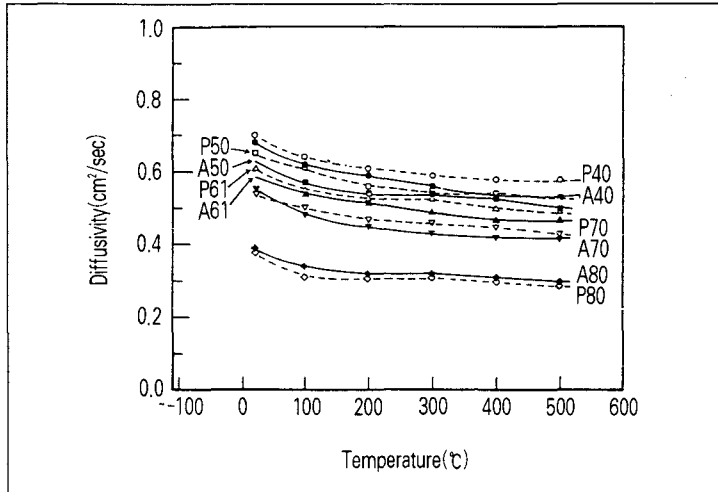
Atomizing 핵연료는 보다 높은 효율로, 보다 높은 안전성을 제공하고 있다.

결론

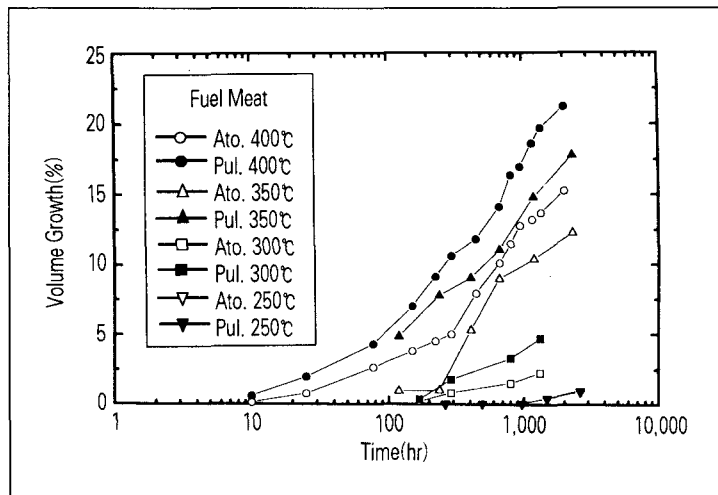
지금 전세계에서 가동되고 있는 연구용 원자로는 325개 정도로서 HEU를 사용하고 있는 원자로는 120개 정도, MEU를 사용하고 있는 원자로는 74개 정도, LEU로 사용하고 있는 원자로는 131개 정도이다.

대부분의 원자로는 LEU로 전환할 수 있도록 핵적·열수력적 계산을 완료한 상태이고, 높은 U-loading을 갖는 U_3Si_2-Al 분산형 LEU 핵연료를 기대하고 있다.

대부분의 핵연료는 미국의 B&W사, 프랑스의 CERCA사, 영국의 BNFL사에서 공급하고 캐나다의 AECL사 등은 자국과 일부 주변국에



(그림 9) Thermal diffusivity of U_3Si -dispersion fuel meat(A : atomized, P : comminuted)



(그림 10) 파쇄공정으로 만든 분말과 atomizing으로 만든 분말의 고온에서 열변용도의 비교

공급을 하고 있다.

따라서 본 atomizing U_3Si/U_3Si_2 개발품은 먼저 미국의 B&W사를 통하여 산업화를 추진하고 이를 통하여 전세계에 공급·확산할 방침이다.

본 개발은 1988년부터 추진하여 국내는 물론이고 미국·캐나다·독일 등지에 1993년까지 특허등록을 마친 상태이다.

현재는 농축우라늄으로 실험을 할

수 없는 실태이므로 모든 노외실험을 감손우라늄으로 하였다.

그러나 핵적인 특성을 제외하고 기계적·물리적인 모든 특성은 감손우라늄과 농축우라늄이 같으므로 상기 서술한 실험결과는 국제적으로 공인된 바 오래이다.

1993년초 한국원자력연구소에서 만든 atomizing 구형 U_3Si_2 를 미국 알콘연구소에 제공하여 high U-loading 실험을 진행 중이다.

핵연료 분말은 한국원자력연구소가 만들고 실험용 분말 분산형 판상 핵연료는 알콘연구소가 만들어 한국원자력연구소의 연구용 원자로 하나로서 성능시험을 할 계획이다.

시험결과는 1998년도 말에 나올 예정이며, B&W사에 공정기술 이전은 1997~1998년도에 이루어질 예정이다.

특히 본 핵연료 제조는 기술 및 노동 집약형으로 단위 제조원가가 50,000달러/kg 정도로 고가이며, B&W사의 연간 매출액이 약 5~10억달러임을 감안하면 매우 경제성이 밝을 것으로 전망하고 있다.

본 개발계획에 따라 원자로 내에서 성능이 확인되면 고농축 우라늄과 동일 또는 높은 중성자속을 제공하는 유일한 핵 비확산 목적 핵연료를 개발한 것이 판명될 것이다.

또한 현재까지 보다 더 높은 열전도도를 갖고 더 높은 연소도로 핵연료를 사용할 수 있을 것으로 기대한다.