

모의 사용후핵연료(SIMFUEL) 및 조사 핵연료의 공기중 산화거동 연구

김건식, 유길성, 민덕기, 노성기, 김은가
한국원자력연구소

요 약

가압 경수로형 핵연료에 대한 장기 저장거동을 연구하기 위하여 모의 사용후핵연료(SIMFUEL) 및 조사 핵연료에 대한 산화시험을 공기중에서 수행하였다. 연소도가 15, 33 및 50 GWD/MTU 로 모의한 핵연료를 300-375°C 구간에서 산화 시험한 결과, 모의 사용후핵연료는 미조사 UO_2 시편과 같이 S-형 곡선의 무게증가 특성을 보여 주었으며, 미조사 UO_2 시편에 비해 산화가 느리게 일어났으며, 모의 사용후핵연료는 연소도가 높을수록 산화속도가 느리다. 고리 2호기에서 2주기 연소한 우라늄 및 가돌리니아 핵연료를 275°C에서 산화 시험한 결과, 조사 UO_2 는 연소도가 증가할 수록 산화가 느리게 일어나며, 우라늄 핵연료는 가돌리니아 핵연료에 비해 산화가 빨리 일어난다.

1. 서 론

사용후핵연료의 저장에는 냉각 매체에 따라 습식저장과 건식저장으로 구분할 수 있다. 사용후핵연료를 수중에 저장하는 습식저장의 경우 사용후핵연료 피복관의 온도가 낮고 지금까지의 많은 운전경험(약 40년)으로 그 안전성이 입증되었기 때문에 현재까지 사용후핵연료의 저장에 가장 큰 역할을 담당하고 있다[1]. 이에 반하여 사용후핵연료를 불활성 기체 또는 공기중에서 저장하는 건식저장 방식은 습식저장에 비해 2차 폐기물 발생량이 적고, 장기저장시 경제적인 이점이 있음에도 불구하고, 사용후핵연료 피복관의 온도가 습식에 비해 높다는 점 때문에 지금까지 이의 실용화가 크게 확산되지 못하였다. 그러나 최근에 미국과 영국 및 캐나다등을 중심으로 한 원자력 선진국들의 연구를 통하여 건식저장시 사용후핵연료의 장기 건전성이 일부 입증됨에 따라 건식저장은 큰 주목을 받고 있다. 그러나 공기중에서 사용후핵연료를 저장하는 건식저장 방식은 아직도 그 건전성이 입증되지 않은 상태이며, 이에 대한 연구가 미국과 캐나다를 중심으로 활발히 수행되고 있다[2,3]. 결합핵연료를 공기중에서 저장할 경우, 핵연료가 공기중의 산소와 반응하면 UO_2 는 준 안정 산화물인 U_3O_7 , U_4O_{11} 또는 U_3O_8 상으로 변환된다. UO_2 가 U_3O_7 나 U_4O_{11} 상으로 변환되면 약 2% 정도의 부피감소가 일어나 피복관의 응력을 주지 않으나 U_3O_8 상으로 변환되면 약 30%정도의 부피 증가가 생겨 피복관에 응력을 주게되고 이로 인하여 피복관은 파단될 수도 있다[4]. 그러므로 공기분위기에서 핵연료의 산화거동 연구는 사용후핵연료의 장기저장건전성 측면에서 매우 중요하다. 본 연구에서는 공기중에서 모의 핵연료 및 조사 핵연료의 산화 거동 시

험을 수행하여 그 특성을 상호 비교·평가하였다.

2. 시험 방법

연소도 변화에 따른 UO_2 의 산화거동을 시험하기 위하여 연소도 15 GWD/MTU로 모의한 핵연료(SFA)와 연소도 33 GWD/MTU로 모의한 핵연료(SFB) 및 연소도 50 GWD/MTU로 모의한 핵연료(SFC) 시편을 300-375°C 구간에서 무게이득 방법으로 산화 시험을 수행하였다. 1 mm 두께로 절단한 디스크 형태의 시편표면을 600grit까지 기계적 연마를 한 후 최종 연마는 1 μ m 다이아몬드 페이스트로 하였다. 연마후 초음파 세척기에서 아세톤과 증류수로 세척하여 표면조건을 동일하게 하였다. 모의 사용후핵연료의 조성은 표 1에 나타내었으며, 산화시험 장치는 그림 1(a)에 개략적으로 나타내었다. 가돌리니아 핵연료와 우라늄 핵연료의 산화거동을 비교하기 위하여 고리 2호기에서 7주기부터 8주기까지 2주기 동안 연소한 J44 집합체의 L12 연료봉(평균연소도: 25 GWD/MTU, 농축도: 1.8%- U^{235} 인 가돌리니아 핵연료)과 K12 연료봉(평균연소도가 35 GWD/MTU, 농축도: 3.5%- U^{235} 인 우라늄 핵연료)에 대한 산화시험을 275°C 공기중에서 수행하였다. 조사 핵연료 산화시험장치는 조사후시험시설 9409 납셀 내에 1kW 용량의 원통형로와 시료 무게 측정용 METTLER 저울(정밀도:10⁻⁵g)을 설치하였다. 시험장치의 개략도는 그림 1(b)에 도시하였다.

3. 시험결과 및 토의

3.1 모의 사용후핵연료(SIMFUEL)의 공기중 산화거동

그림 2-5는 미조사 UO_2 시편과 연소도가 15 (SFA)와 33 (SFB) 및 50 GWD/MTU(SFC)로 모의하여 제조한 모의 사용후핵연료를 300-375°C 공기중에서 산화시험한 결과를 나타내었다. 표 2에는 미조사 UO_2 시편과 모의 사용후핵연료 시편이 각 온도에서 0.6wt% 무게증가가 일어나는 시간을 나타내었으며, 그림 6에는 0.6wt% 무게증가가 일어나는 시간을 절대온도의 역수의 함수로 나타내었다. 모의 사용후핵연료의 무게증가 거동은 시험온도 구간에서 연소도에 관계없이 S-형 곡선의 특징을 보여주었는데 이는 미조사 UO_2 시편의 경우와 유사한 것이다. 모의 사용후핵연료의 산화속도는 미조사 UO_2 에 비해 훨씬 느리며, 모의 사용후핵연료의 연소도가 증가할수록 산화속도가 느려지는 것을 알 수 있었다. 이 결과는 Tayler등의 모의 사용후핵연료에 대한 산화 시험 결과인 “연소도가 증가할수록 U_3O_8 상 형성 시간이 느려진다”는 것에도 일치한다.

3.2 조사 핵연료의 공기중 산화거동

그림 7에는 연소도 16 GWD/MTU의 우라늄 핵연료와 연소도 10 GWD/MTU의 가돌리니아 핵연료 및 미조사 UO_2 시편을 275°C에서 산화시험한 결과를 나타내었다. 이때 펠렛의 1/3 정도의 크기이고 모양이 비슷한 것을 각 시편으로 선정하였다. 미조사 UO_2 시편은 S-형 곡선의 산화거동을 보여주며, 약 1.2% 무게증가 후 큰 덩어리로 파쇄가 일어났으며 1.5% 무게증가 후 국부적인 분말화가 일어나고 약 1.9% 무게증가시 완전히 분말화가 되었다. 우라늄 핵연료와 가돌리니

아 핵연료 모두 초기 산화는 미조사 UO_2 에 비해 매우 빠르게 일어났으며, 우라늄 핵연료 시편은 2wt% 부터 무게증가가 느리게 일어나다가 150시간 산화 후에 시편에 국부적 분말화가 일어나면서 무게증가가 다시 빠르게 일어났다. 가돌리니아 핵연료 시편은 2wt% 부터 무게증가율이 둔화되었으며, 500시간 산화시험 후에도 이 경향은 계속되었다. 이러한 결과로 보아 가돌리니아 핵연료가 우라늄핵연료에 비해 2wt% 부터 무게증가율이 둔화되는 산화거동이 더욱 오랫동안 지속된다. 이러한 결과는 U_4O_9 상의 안정화 경향, 즉 가돌리니아 핵연료가 우라늄 핵연료 보다 U_4O_9 상의 안정화 유지 시간이 길게 지속되어 2wt% 부터 무게증가율이 둔화되는 시간이 길어지기 때문인 것으로 판단되며, 이 결과는 PNL의 Gd_2O_3 doping 시편의 시험결과와도 일치한다[5]. 그림 8은 우라늄 핵연료와 가돌리니아 핵연료의 연소도 변화에 따른 산화 거동의 영향을 알아보기 위하여 연소도가 16 과 38 GWD/MTU인 우라늄 핵연료 시편과 연소도가 10 과 28 GWD/MTU인 가돌리니아 핵연료 시편을 275°C의 공기중에서 산화시험한 결과를 나타내었다. 우라늄 및 가돌리니아 핵연료 모두 연소도 증가에 따른 초기 산화에는 큰 영향을 받지 않았다. 그러나 2wt% 이후의 경우, 우라늄 핵연료는 연소도가 증가할수록 무게증가율이 둔화되는 시간의 구간이 길어졌으나 가돌리니아 핵연료는 시험 기간 동안(시간) 무게증가가 재 상승하지 않았다. 이러한 결과로 보아 조사 핵연료의 연소도가 증가할수록 2wt%에서 형성된 U_4O_9 상의 안정화가 오래 동안 유지되어 산화진행을 억제하는 것으로 믿어진다.

4. 결 론

- 가. 모의 사용후핵연료를 공기중에서 산화시험한 결과 모의 사용후핵연료는 미조사 UO_2 에 비해 산화속도가 느리며, 모의 사용후핵연료의 연소도가 높을수록 산화속도가 느리다.
- 나. 미조사 및 모의 사용후핵연료는 S-곡선 형태의 무게증가 거동을 나타내며, 조사 핵연료는 초기에 무게증가가 빠르게 일어나다가 약 2wt% 부터 산화속도가 둔화되는 경향을 보인다.
- 다. 조사 핵연료는 연소도가 증가할수록 산화가 느리게 일어나며, 우라늄 핵연료는 가돌리니아 핵연료에 비해 산화가 빨리 일어난다. 이것은 연소도가 높은 우라늄 핵연료와 가돌리니아 핵연료일수록 U_4O_9 상의 안정화가 오래 동안 유지되어 핵연료의 산화진행을 억제한다.

참고 문헌

1. IAEA, "Behavior of Spent Fuel and Storage Facility Components during Long-term Storage", IAEA-TECDOC-673 (1991)
2. P. Taylor, D.D. Wood and A.M. Duclos, J of Nucl. Materal, 189, 116 (1992),
3. R.E. Einziger and S.C. Marschman, Nucl. Technol. 94, 383 (1991)
4. R.E. Einziger and R.V. Strain, Nucl. Technol. 75, 82 (1986)
5. L.E. Thomas, R.E. Einziger and H.C. Buchanan, J of Nucl. Materal, 201, 310 (1993),

표 1. 모의 사용후핵연료 (SIMFUEL)의 조성

| 원소 | 조성 | SFA (15 GWD/MTU) | SFB (33 GWD/MTU) | SFC (50 GWD/MTU) |
|--------------------------------|----|---------------------|---------------------|---------------------|
| U | | 100g | 100g | 100g |
| Nd ₂ O ₃ | | 0.2890 | 0.6337 | 0.9632 |
| ZrO ₂ | | 0.2174 | 0.4782 | 0.7245 |
| MgO ₂ | | 0.2196 | 0.4831 | 0.7320 |
| CeO ₂ | | 0.4428 | 0.9738 | 1.4754 |
| Ra ₂ O ₃ | | 0.1896 | 0.4150 | 0.6303 |
| BaCO ₃ | | 0.0908 | 0.1997 | 0.3026 |
| La ₂ O ₃ | | 0.0650 | 0.1431 | 0.2168 |
| PdO | | 0.0716 | 0.1574 | 0.2385 |
| SiO ₂ | | 0.0264 | 0.1242 | 0.1882 |
| Y ₂ O ₃ | | 0.0271 | 0.0597 | 0.0904 |
| Rb ₂ O ₃ | | 0.0250 | 0.0518 | 0.0785 |

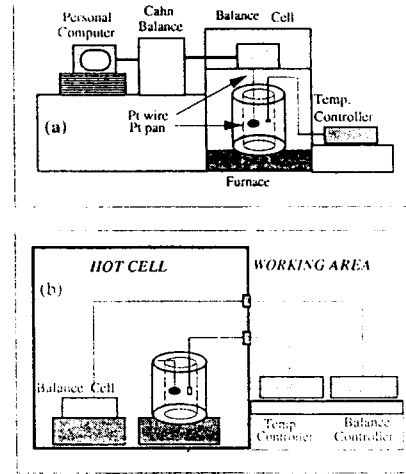


그림 1. 모의 사용후핵연료 및 조사핵연료 산화시험장치

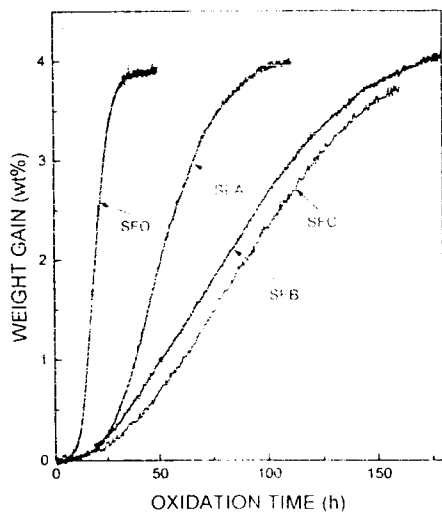


그림 2. 모의 사용후핵연료의 공기중 산화기동(300°C)

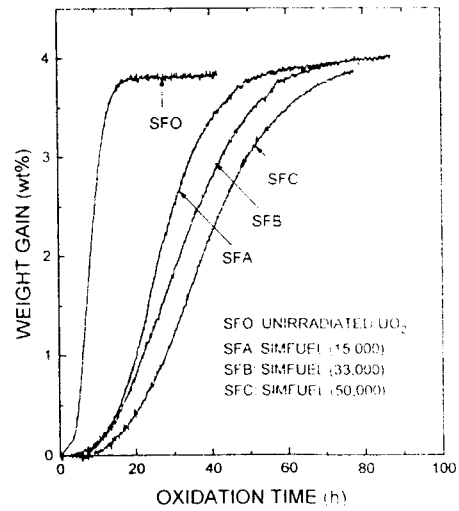


그림 3. 모의 사용후핵연료의 공기중 산화기동(325°C)

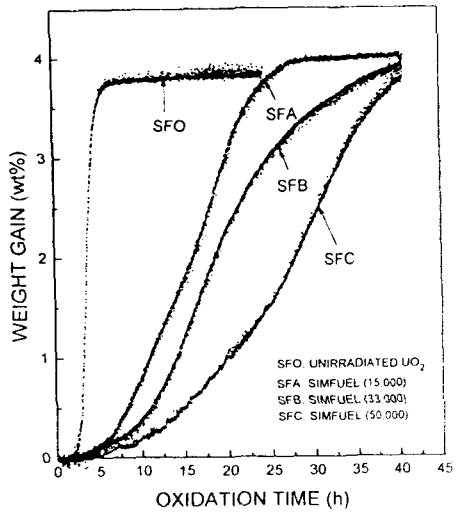


그림 4. 모의 사용후핵연료의 공기중 산화거동(350°C)

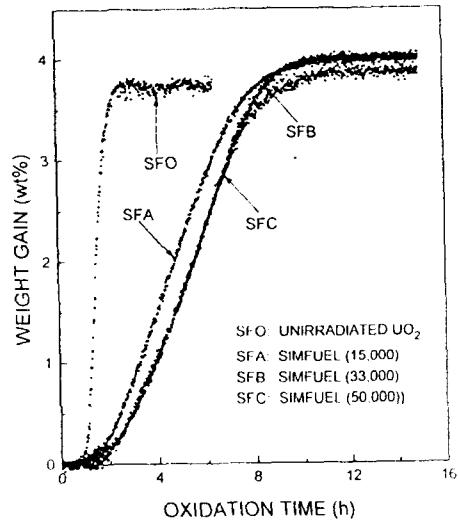


그림 5. 모의 사용후핵연료의 공기중 산화거동(375°C)

표 2. 모의 사용후핵연료가 0.6wt% 무게증가가 일어나는 시간

| 시편 온도 | SFO (Unirra.) | SFA (15,000) | SFB (33,000) | SFC (50,000) |
|-------|---------------|--------------|--------------|--------------|
| 300°C | 16 | 32.5 | 38.5 | 48 |
| 325°C | 5.8 | 17 | 18 | 28.8 |
| 350°C | 2.9 | 9 | 12 | 16 |
| 375°C | 1.5 | 2.7 | 3.2 | 3.2 |

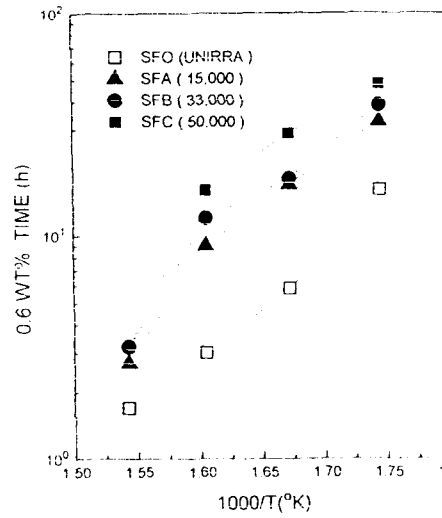


그림 6. 모의 사용후핵연료가 0.6wt% 무게증가가 일어나는 시간

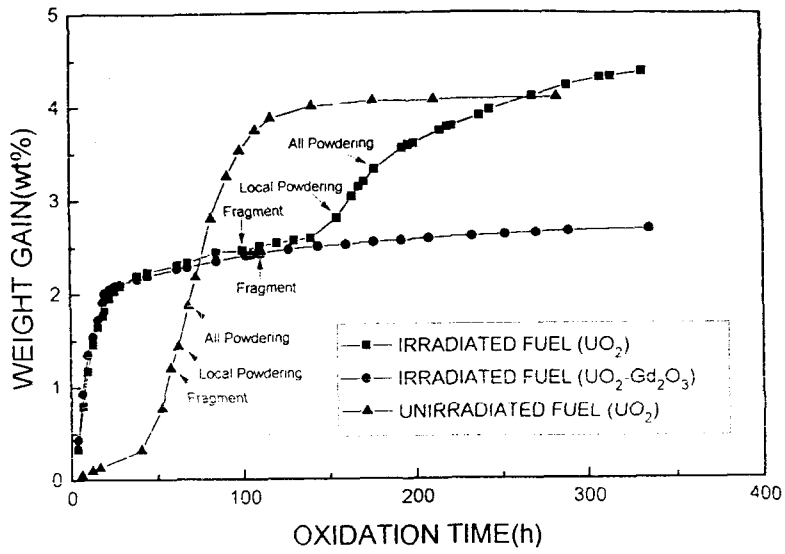


그림 7. 미조사 UO₂와 우라늄 및 가돌리니아 핵연료의 산화거동 비교 (275°C)

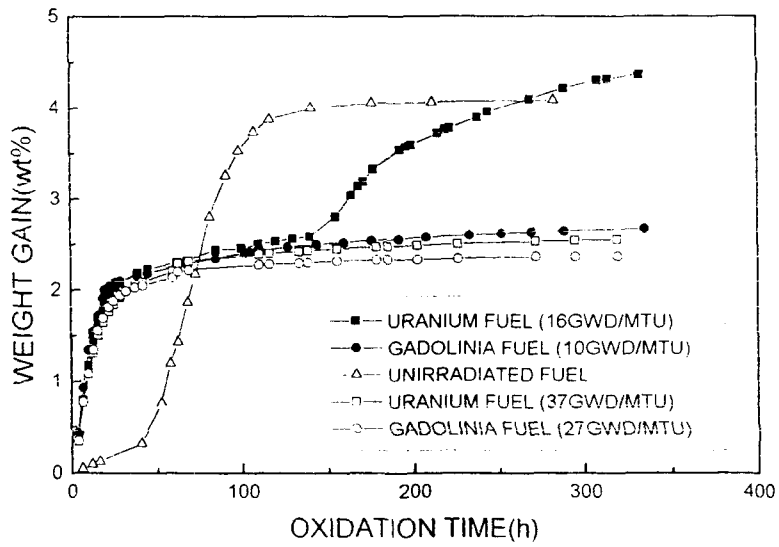


그림 8. 우라늄 및 가돌리니아 핵연료의 연소도 효과 (275°C)