

국산 고연소도 핵연료의 산화를 통한 Kr-85 방출거동

김대호, 이찬복, 김선기, 김영민, 양용식, 정연호, 이형권
대전광역시 유성구 덕진동 150, 한국원자력연구소, kdh@kaeri.re.kr

1. 개 요

한국원자력연구소에서는 국내에서 제조된 국산 고연소도 핵연료의 성능분석시험을 수행하고 있다. 집합체 평균연소도 53 MWd/kgU 의 울진 2 호기 고연소도 핵연료를 이용 하여 자체 개발되어 핫셀에 설치된 사용후연료 가열(PIA)시험장비에서 시험이 수행되고 있다[1].

예비시험으로 고연소도 핵연료 소결체의 산화를 통해 결정립경계에 잔류된 불활성기체인 Kr-85 를 시간 및 온도에 따라 측정하여 소결체의 핵분열 기체 방출거동을 시험하였다. 고연소도 핵연료 결정립 경계의 핵분열기체는 사고해석에 있어 절대량 측정이 중요하다. 이를 위해 산화분위기를 통해 결정립 경계면 만을 분리하여 이때 방출된 불활성 기체의 방출량을 측정하게 된다.

산화시 고연소도에 따라 생성된 핵분열생성물에 의해 산화거동을 지연시키는 현상이 발생하며, 온도와 시간에 따른 종합적인 조건을 만족할 수 있도록 설정되어야 한다. 본 논문에서는 핫셀내 설치된 가열시험장치를 이용하여 국산 고연소도 핵 연료의 산화특성 및 Kr-85 방출거동을 분석하였다.

2. 시험방법 및 고찰

2.1 시험방법

본 시험에 사용된 시험장비는 그림 1.과 같이 1700℃ 까지 가열이 가능한 전기저항로가 핫셀 내에 설치되어 가열시 핵분열기체를 실시간 분석이 가능 하고, Cold Trap 을 통한 핵분열기체의 총량을 확인할 수 있는 Post-irradiation Annealing(PIA) 장비 이다.

시험은 봉 평균연소도 54 MWd/kgU 의 국산 고연소도 핵연료의 시료로 덩어리형태의 대략 200 mg 2 개, 360mg 1 개 시편에 대해 수행되었다.

분위기가스는 헬륨과 표준공기를 혼합하여 MFC 를 통하여 장입하고, 가열온도는 분당 10℃ 상승하여 500℃ ~ 600℃에서 3 ~ 6 시간에 걸쳐 가열산화시험이 수행되었다. 가열 산화되어 결정립 경계가 산화 분리되면서 발생하는 불활성 핵분열 기체 Kr-85 는 1 차적으로 비례계수기인 베타 계측기 에서 실시간 Activity 를 측정하고 Cold Trap 을 통하여 축적된 Kr-85 는 NaI 감마검출기를 통하여 누적총량을 실시간 측정 하게 된다.

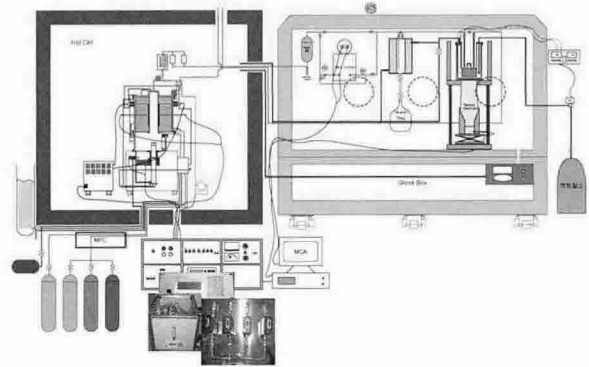


그림 1. 핫셀에 설치된 PIA 장비

2.2 시험고찰

일반적으로 UO_2 는 산화에 따라 조사된 시편과 비조사 시편의 중간단계 거동이 다르다. 비조사 UO_2 산화시 U_3O_7 의 중간형태를 거쳐 U_3O_8 으로 변화 하나 조사된 UO_2 의 경우 산화시 U_4O_9 의 중간형태를 거쳐 U_3O_8 으로 변화한다. UO_2 산화시 무게(Weight Gain)는 3.96%정도 증가하게 되고 UO_2 에서 $UO_{2.6667}$ 로 변화하게 된다. U_4O_9 의 경우 2.25 분율이며 U_3O_8 은 2.6667 로 변화하고 약간의 차이는 있으나 3.96% 무게증가를 실험적 결과로 확인할 수 있다. 이때 부피 또한 약 30% 정도 증가하게 된다. 조사된 시편의 경우 2 단계의 산화 거동을 보이게 되는데 무게이득이 1.8 ~ 2.2%정도에서 Fragment 형태로 분리되었다가 약간의 산화 지연 상태를 보인다. 이는 안정화된 U_4O_9 의 중간 형태가 산화를 지연시키는 것으로 알려져 있다.

산화온도는 450℃ ~ 500℃에서 가장 빠르게 산화 하며, 이때 산소의 분율은 크게 산화속도에 지배적 이지 못하다. 오히려 시료의 양에 따라 산화 분위기에서의 가열시간에 영향을 받게 된다.

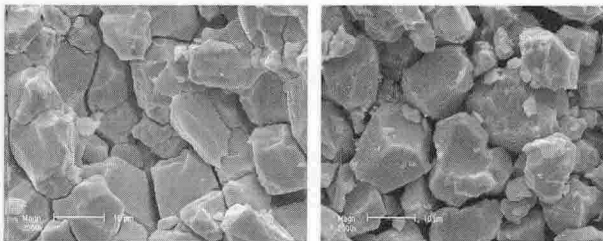
참고로 조사된 UO_2 의 초기산화 속도는 비조사 UO_2 보다 빠르게 산화되지만 U_4O_9 의 안정화상이 산화 속도를 줄이는 결과를 보일 수 있다. 미조사 UO_2 TGA 분석결과 450℃를 기준으로 100% STD-Air 와 50% STD-Air + 50% He 을 공급하여 산화시켰을 경우 산화속도에는 큰 영향을 주지 않았고 2 시간정도면 완전 산화가 되는 것으로 나타났다. 오히려 450℃ 보다 500℃에서의 시험을 실시할 경우 2 ~ 3 배 정도의 빠른 산화속도를 보인다.[2]

가열시편의 부위별 산화거동을 보면 450°C에서 2 시간 산화를 기준으로 Rim 영역의 결정립계에서는 Kr-85 가 대략 30%미만이 방출되지만 중간영역의 결정립계에서는 전체 양의 80% 가 방출되는 것으로 확인되고 있다.[3, 4]

3. 시험분석 및 결과

조사된 UO₂ 소결체의 경우 산화가 진행되면 UO₂ 가 UO_{2.6667} 로 변화하면서 핵분열 기체의 확산 특성이 다르기 때문에 산화시험 보다는 가열시험을 통하여 핵분열기체의 방출거동을 확인 하는 것이 바람직하다. 하지만 핵연료의 사고시 결정립 경계와 결정립 내의 핵 분열기체의 총량과 산화 조건에서 방출거동은 과도 조건에서의 핵연료 분석에 중요한 자료로서 역할을 하게 된다.

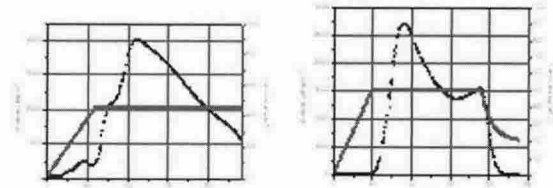
1 차 시험으로 조사 UO₂ 시편 235 mg 덩어리를 450°C에서 Helium 50%와 표준공기 50%를 혼합하여 각각 100ml 씩 총 200ml 를 공급하면서 3 시간 산화 가열시험을 수행하였다. 시험결과 그림 2.a 에서 보는 것과 같이 결정립 경계면이 완전하게 분리되지 않고 일부 산화되지 않은 시료들이 있는 것을 SEM 을 통하여 확인할 수 있었다. 그림 3.a 와 같이 Kr-85 의 초기 방출이 불안정한 거동을 보인 것은 가열온도가 산화에 지배적인 온도에 미치지 못한 것으로 판단 되며 가열시간 또한 부족한 것으로 판단된다.



a. 450 °C 3 시간가열시편 b. 500 °C 2.5 시간가열시편

그림 2. 산화 가열시험후 미세사진(SEM)

2 차 시험은 조사 UO₂ 시편 199 mg 덩어리를 500°C에서 Helium 50ml 와 표준공기 100ml 씩 혼합하여 총 150ml 를 공급하면서 2.5 시간 산화가열시험을 수행하였다. 시험중 계측기의 방사능 측정결과를 주시하면서 가능한 결정립 경계만의 산화를 유도할 수 있도록 시험을 진행하였다. 시험결과 그림 2.b 에서 보는 것과 같이 결정립 경계면이 완전하게 분리된 것을 확인할 수 있었으며, 표면의 상태로 보아 결정립 내의 산화는 진행되지 않은 것으로 판단된다. Kr-85 의 방출거동은 그림 3.b 와 같이 안정적으로 방출 되었으며 산화에 따른 가열온도 및 시간이 적절한 것으로 판단된다.



a. 450 °C 3 시간가열시편 b. 500 °C 2.5 시간가열시편

그림 3. 베타 검출기의 실시간 측정결과

3 차 시험은 조사 UO₂ 시편 360 mg 덩어리를 500°C 에서 2 시간 가열한 후 이어서 600°C에서 3 시간을 가열하여 U₃O₈ 으로 완전산화를 목적으로 수행되었다. 표준공기만 150ml 를 공급하였으며 측정결과 결정립 경계가 산화된 후 이어 결정립 안쪽으로 산화가 진행되어 급격한 Kr-85 의 핵분열기체가 방출하는 것을 확인할 수 있었다.

3. 결 론

국산 고연소도 핵연료의 성능자료 생산을 위해 산화 가열시험을 통하여 결정립경계면에서의 핵분열 기체 Kr-85 의 정량적 방출거동을 확인하였다.

고연소도 핵연료의 산화시 500°C에서 3 시간 가열하면 조사시편의 결정립 경계면의 Kr-85 는 모두 방출되는 것을 확인하였다. 고연소도 핵연료의 경우 미조사 UO₂ 와의 산화가동이 다르게 나타난다. 따라서 본 시험을 통하여 생산된 자료는 과도 조건에서의 핵분열 기체 방출거동에 이용하고 사용후 핵연료의 처리 처분에 이용될 수 있을 것으로 판단된다.

참고문헌

- [1] 김대호 외, “조사후 핵연료 가열시험장치 개발”, 2004 춘계원자력학회, 2004. 5.
- [2] 김건식 외, “가연성흡수물질 소결체 Scrap 재활용을 위한 UO₂-Gd₂O₃ thruf 산화특성에 관한 연구” 2001. 4.25, KAERI/TR-1815/2001.
- [3] S. Ravel, G. Eminent, E. Muller, L. Caillot, “Partition of Grain Boundary and Matrix Gas Inventories ; Result Obtained Using the ADAGIO Facility”, 347p, Fission Gas Behaviour in Water Reactor Fuels, 2000.
- [4] L. W. Dickson, R. S. Dickson, “Fission Product Releases from CANDU Fuel at 1650°C; The HCE4 Experiment”, AECL Chalk River”, 274p, Fuel Safety Research Specialists’ Meeting, Mar. 2003.
- [5] 박근일 외, “연소도별 악티나이드 및 핵분열생성물 특성비교”, Experiment Report, 2004. 5.