

가돌리니아 함유 이산화 우라늄 상용 소결체들의 열물성 측정 및 평가

양재호^{a*}, 김건식^a, 송근우^a, 김종현^a, 정연호^a, 유호식^b, 이승재^b, 김규태^b

^a 경수로연료개발부, 한국원자력연구소 yangjh@kaeri.re.kr^{*}

^b 설계기술원 핵연료설계처, 한전원자력연료주식회사

1. 서론

가돌리늄(Gd)이 함유된 이산화 우라늄(UO₂) 소결체는 대표적인 가연성 중성자 흡수 핵연료이다. 상용 가연성 흡수 핵연료 소결체는 생산성과 소결체 품질을 고려하여 각 회사 고유의 제조 공정을 통해 제조된다.

서로 다른 공정을 통해 제조된 소결체들은 동일 조성의 Gd 가 함유된 소결체라도 미량 이종원소의 존재, 밀도, 결정립 크기, 양이온 고용도 등의 소결체 특성 차이를 나타낸다. 이러한 소결체 특성의 차이는 중요한 물성 중 하나인 핵연료 열물성에도 영향을 미칠 수 있다.

이 논문에서는 국내에 수입되어 사용되어지는, 제조 공정이 다른 두 종의 Gd 함유 UO₂ 상용 소결체들과 실험실 제조 소결체의 열물성을 측정하여 비교하였다. 또한 측정 결과를 핵연료 설계 해석모델과 비교 평가하였다.

2. 실험 방법

표 1 은 각 제조사 별로 제조된 Gd 함유 UO₂ 상용 소결체의 제조 공정 및 소결체 특성을 비교한 것이다.

표 1. 제조 소결체와 외국상용 소결체의 제조공정 및 소결체 특성비교

| | KAERI | B 사 | C 사 | |
|-----------------------------------------|-----------------------------------------------------|------------|----------------|----------------|
| 시편 명 | K-6 | B-6 | C-6 | |
| 조성(wt% Gd ₂ O ₃) | 6wt% | 6wt% | 6wt% | |
| 공정 | 분말처리 | 분쇄 | 혼합 | |
| | 첨가제 (ppm) | Al (100) | 첨가하지 않음 | Al(100)-Si(40) |
| | 소결온도/시간 | 1730°C/4hr | 1740°C/4~6.5hr | 1780°C/6hr |
| | 분위기(H ₂ O/H ₂) ^{*2} | 3% | 5% | 3% |
| 밀도 (g/cm ³) | 10.33 | 10.22 | 10.25 | |

^{*1} UO₂ 분말 분쇄 후 다시 UO₂-Gd₂O₃ 분말을 분쇄함.

^{*2} H₂O/H₂는 CO₂/H₂와 산소분압이 거의 등가임

표 1 에 표시된 시편들을 이용하여 열물성을 측정하였다. 열확산도 (α) 는 laser-flash 법(Netsch LFA 427)을 이용하여 상온에서 1400°C까지 측정하였다. 온도에 따른 비열 (C_p) 측정은 DSC(Netsch DSC 404C) 를 이용하였다. 온도에 따른 밀도 (ρ) 변화는 온도에 따른 열팽창 계수를 측정하고 열팽창 계수와 밀도와의 관계를 통해 구하였다. 선형 열팽창 계수는

dilatometer (Netzsch · DIL 420) 를 이용하여 상온에서 1400°C까지 측정하였다.

측정된 결과들을 현재 원자력연료주식회사에서 설계 해석모델로 사용하고 있는 값과 비교 평가하였다.

3. 결과

그림 1 은 온도에 따른 열팽창 거동을 측정한 결과를 UO₂ [1]의 열팽창과 함께 나타낸 그림이다. 시편 별로 열팽창 거동은 거의 차이가 나지 않음을 확인할 수 있다. 현 설계 모델은 가돌리니아 함유 UO₂ 소결체의 열팽창을 가돌리니아 함량과 무관하게 UO₂ 와 동일한 값을 적용하고 있다.

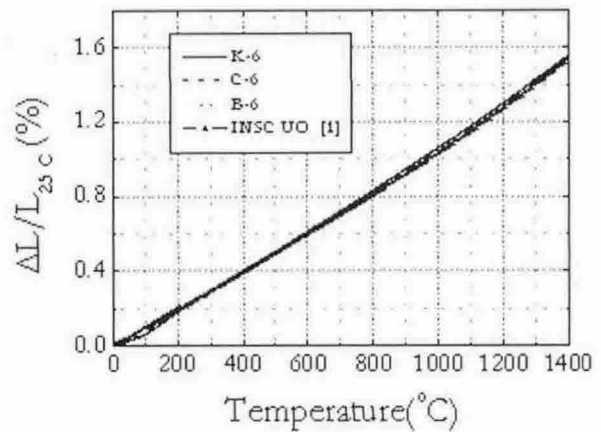


그림 1. 제조사 별 UO₂-6wt%Gd₂O₃ 소결체들의 열팽창 거동

그림 2 는 온도에 따른 비열의 변화를 측정한 결과이다. 일반적으로 가돌리니아가 고용되면 비열이 증가하지만 고용량이 적은 경우 비열의 증가는 적은 것으로 알려져 있다. 따라서 설계 모델에서는, 가돌리니아 함량이 12wt%이하인 경우에 UO₂ 와 동일한 값을 적용하도록 제시하고 있다. 측정된 비열은 제시된 UO₂ 의 비열보다는 전체적으로 증가하며 제조사 별로 큰 차이를 보이지 않는다.

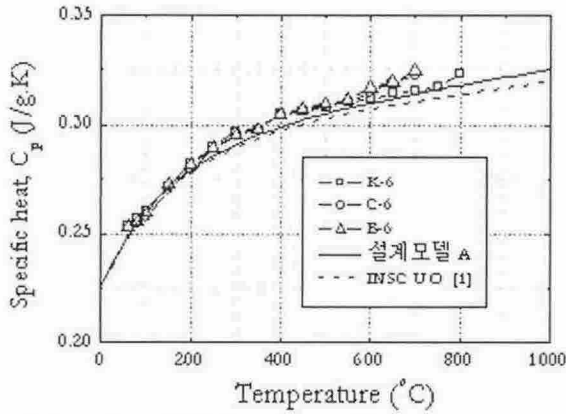
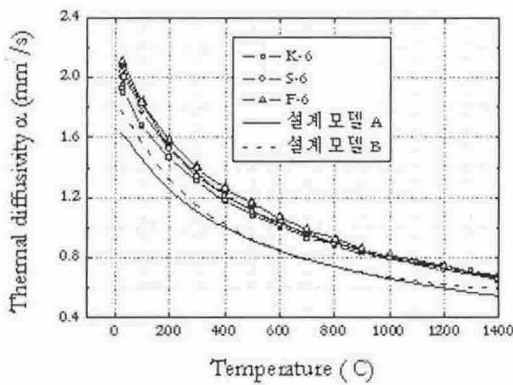


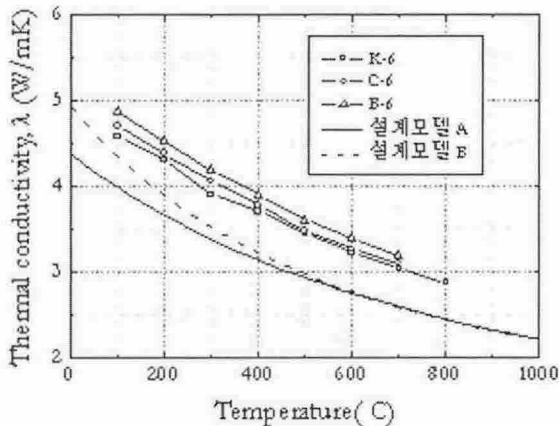
그림 2. 제조사 별 UO₂-6wt%Gd₂O₃ 소결체들의 비열 변화.

그림 3 은 온도에 따른 열확산도와 열전도도의 변화를 나타낸 그림이다. 열전도도는 측정된 열확산도, 비열, 열팽창으로부터 식 1 을 이용하여 계산하였다.

$$\lambda = \alpha \cdot C_p \cdot \rho / (1 + 3(\Delta L / L)) \quad (1).$$



(a)



(b)

그림 3. 제조사 별 UO₂-6wt%Gd₂O₃ 소결체들의 열확산도(a)와 열전도도(b) 변화.

K-6 과 C-6 시편은 서로 유사한 열확산도와 열전도도 값을 가진다. 반면에 B-6 시편은 두 시편보다 약간 높은 값을 가진다. 이종원소가 함유되면 phonon-defect 간의 간섭에 의해 열확산도와 열전도도가 감소한다. K-6 와 C-6 시편의 경우 소결체 특성을 개선하기 위해 Al₂O₃ 나 SiO₂ 를 첨가하는 것으로 알려져 있다. 따라서 열확산도와 열전도도의 감소는 이종원소의 첨가에 기인한 것으로 보인다.

그림 3 에서는 설계 모델에서 제시한 UO₂-6wt%Gd₂O₃ 소결체의 열확산도와 열전도도의 하한값을 함께 도시하였다. 설계 모델의 열전도도는 측정된 열전도도의 약 85%에 해당한다. 따라서 설계 해석에 사용되는 열전도도 값은 실제 측정값보다 온도 계산에 보수적으로 설정되어 있다.

4. 결론

6wt%의 Gd₂O₃ 가 함유된 두 종의 상용 가돌리니아 핵연료와 시험실 제조 핵연료의 열물성을 측정하고 설계 해석 값과 비교하였다. 열팽창과 비열은 제조사 별로 큰 차이를 보이지 않았고 열확산도와 열전도도는 첨가제 유무에 따라 약간의 차이를 보였다. 그러나 설계 모델로 사용하는 열전도도 하한보다는 모두 높은 값을 가짐을 확인하였다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 사업의 일환으로 수행되었음

참고문헌

- [1] Material Properties Database, International Nuclear Safety Center at Argonne National Laboratory, USA (www.insc.anl.gov/matprop)