

사용후핵연료의 산화유도시간 및 분말화시간

강권호, 나상호, 박창제, 김영희, 송기찬
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150
nghkang@kaeri.re.kr

1. 서론

UO₂가 U₃O₈의 형태로 산화되면서 23%의 밀도 감소와 35%의 부피팽창으로 응력을 견디지 못하고 깨어져 분말형태로 변하게 된다. 이는 핵연료-피복관 상호작용(Pellet-Cladding Mechanical Interaction, PCMI)을 일으켜 노내 건전성과 결합연료봉의 주원인이 된다. 또한 열전도도의 감소, 열팽창의 증가, 용해도 증가 등 물성 변화가 발생하며, 이 역시 핵연료의 노내 건전성이나 사용후 핵연료의 장기저장 및 처분 등 안전한 관리에 큰 영향을 미치게 된다. 따라서 핵연료의 노내 건전성 평가나 사용후핵연료의 건식 저장시 열화에 따른 장기 건전성 유지 여부를 평가하기 위해서는 핵연료의 산화거동 분석이 필수적이라 할 수 있다. 특히 초기 산화가 시작되기 위해 필요한 시간(OIT, Oxidative Induction Time)과 U₃O₈이 되기 시작하는 분말화 시간(PFT, Powder Formation Time)은 저장용기 및 이송용기의 설계, 사용후핵연료의 건식 재활용을 위한 탈피복, 분말화 등에 꼭 필요한 기초자료이다. 본 연구에서는 사용후핵연료의 산화유도시간 및 분말화시간에 가장 큰 영향을 미치는 온도와 사용후핵연료에 존재하는 핵분열생성물 중 고용체를 형성하는 성분의 영향을 분석하기 위해 산화 실험을 수행하였다. 열천칭분석기를 이용하여 573~873 K의 온도범위에서 등온조건에서 수행하였다.

2. 실험 및 결과

사용후핵연료의 산화거동을 분석하기 위해서 천연 UO₂에 고용체를 형성하는 핵분열생성물의 안정한 화합물을 혼합하여 제조한 모의핵연료를 실험에 사용하였다. 온도의 영향을 분석하기 위해 573~873 K의 온도범위에서 등온조건에서 수행하였으며, 연소도의 영향을 분석하기 위해 3~12 at%의 연소도에 해당하는 모의 핵연료를 이용하였다. 실험에 사용된 열천칭분석기(TGA 92-12, SETARAM)는 최대온도 1000 °C, 정밀도 1 µg까지 측정할 수 있는 장비를 이용하였다.

그림 1은 온도에 따른 산화유도시간을 나타낸 것이다. 온도가 증가할수록 산화유도시간은 기하급수적으로 감소하는 것으로 나타났다. 그림 2는 연소도에 따른 산화유도시간을 나타낸 것이다. 623 K의 온도에서는 연소도가 증가할수록 산화유도시간은 증가하는 것으로 나타났으나, 상대적으로 고온인 773 K의 온도에서는 연소도 증가에 따라 증가하지 않는 것으로 나타났다. 이로써 저온에서는 고용체를 형성하는 핵분열생성물이 초기 산화를 지연시키는 것을 알 수 있었으며, 고온에서는 큰 영향을 미치지 않는 것을 알 수 있었다.

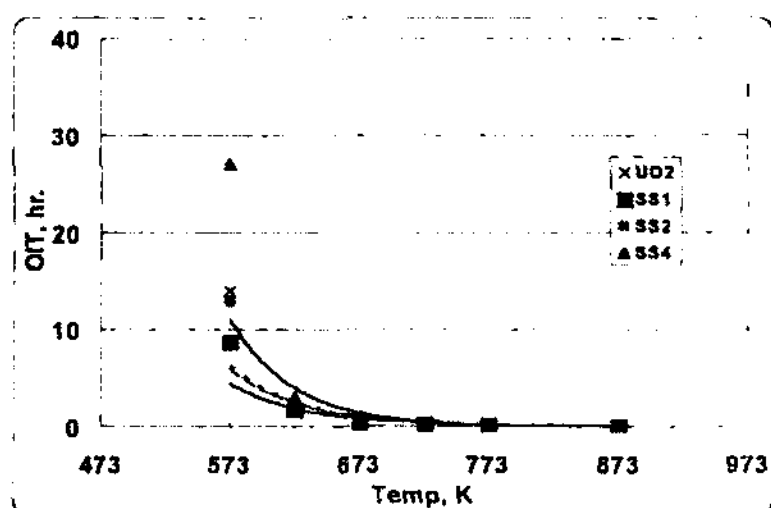


Fig 1. OIT of simulated fuels with temperature.

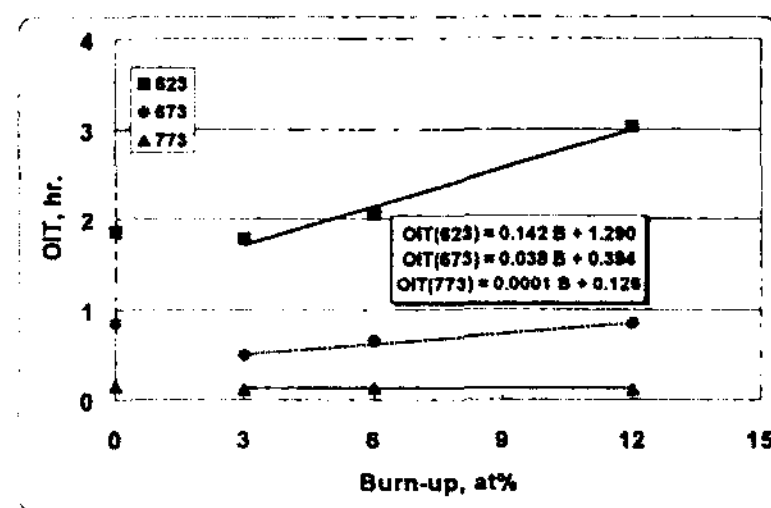


Fig 2. OIT of simulated fuels with burn-up.

그림 3은 UO_2 가 U_3O_8 으로 변환되면서 밀도 차이에 의한 부피팽창으로 분말화되는 시간을 온도에 따라 나타낸 것으로 산화유도시간과 같이 온도증가에 따라 감소하는 것으로 나타났다. 그림 4는 연소도에 따른 분말화시간을 나타낸 것으로 623 K의 온도에서는 연소도가 증가할수록 분말화시간은 증가하는 것으로 나타났으나, 상대적으로 고온인 773 K의 온도에서는 연소도 증가에 따라 크게 증가하지 않는 것으로 나타났다. 이는 산화유도시간과 유사한 것으로 저온에서는 고용체를 형성하는 핵분열생성물이 초기 산화를 지연시키므로써 분말화시간 역시 지연되는 것을 알 수 있으며, 고온에서는 큰 영향을 미치지 않는 것을 알 수 있었다. 이상의 결과로 분말화시간과 산화유도시간은 밀접한 관계를 갖고 있으며, 사용후핵연료의 관리 및 재활용에 유용한 자료로 사용될 수 있을 것이다.

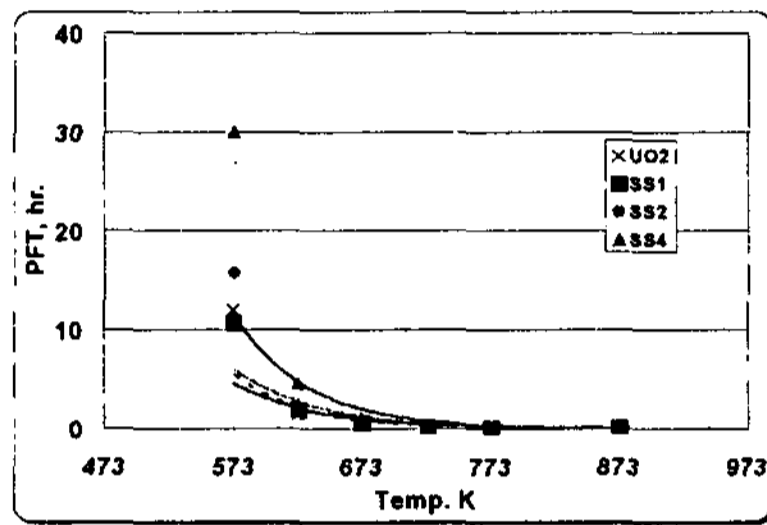


Fig. 3. PFT of simulated fuels with temperature.

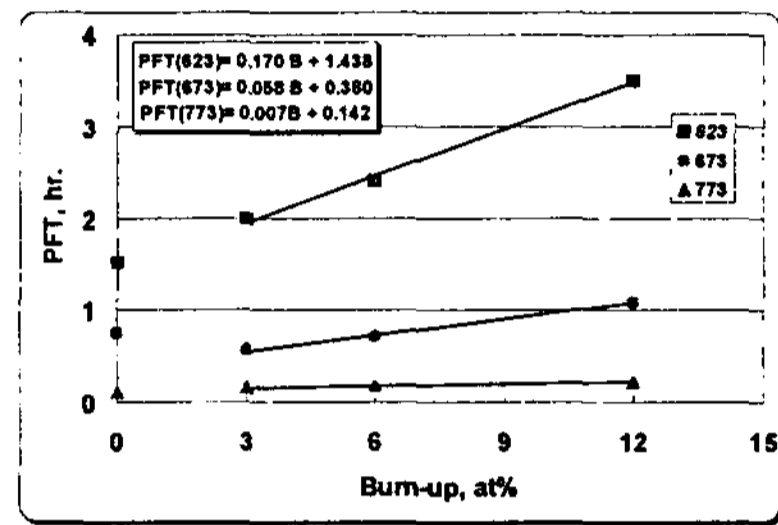


Fig. 4. PFT of simulated fuels with burn-up.

3. 결론

모의 사용후핵연료를 이용한 산화거동 실험을 통해서 산화유도시간과 분말화시간은 같은 경향을 보이며, 온도증가에 따라 감소하는 것으로 나타났다. 저온에서는 고용체를 형성하는 핵분열생성물이 초기 산화를 지연시켜 산화유도시간과 분말화시간이 길게 나타났으나, 고온에서는 큰 영향을 미치지 않는 것을 알 수 있었다.

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.