

고연소도 큰결정립 UO_2 사용후 핵연료의 고온산화시험 특성

김대호, 양용식, 방제건, 김선기, 임익성, 송근우, 권형문
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 kdh@kaeri.re.kr

1. 서론

국산 UO_2 핵연료의 고연소도화가 진행되고 있으며, 추가적으로 출력 증강이 더불어 연구 진행되고 있다. 이러한 추세에서 개발된 큰결정립 UO_2 소결체는 고연소도핵연료의 취약성을 보완하여 주기후반에서의 핵분열기체 방출을 억제할 수 있는 대안으로 개발되었다. 하나로 OR 조사공에서 33,600 MWd/MTU까지 조사된 큰결정립 소결체를 핵연료 가열장비(Post-Irradiation Annealing Apparatus)를 이용하여 산화시험을 실시하였으며, 3종의 결정립 크기에 따라 같은 산화조건에서 방출된 핵연료기체 Kr-85의 양을 측정하였고 SEM을 통하여 미세조직의 변화를 관찰하였다. 국제추세에 있는 고연소도 핵연료 소결체의 제조방법은 다양한 형태로 만들어진다. 일반적으로 결정립 성장을 위한 첨가제를 이용하는 것이 보편적인 방법이나 가열시간과 온도를 조절하여 결정립 크기를 향상시키기도 한다. 본 실험에 사용된 소결체는 표 1.과 같이 UO_2 분말에 U_3O_8 분말과 종자를 함께 이용하여 결정립을 성장시키는 기술이 적용되었으며, 인위적으로 장기간의 가열시간을 조절하여 결정립을 성장시켰다. 3종의 서로다른 조사 후 큰결정립 소결체에 대해 동일조건에서의 고온 산화시험을 실시하고 실시간 핵분열기체의 방출거동을 확인하였으며 SEM을 통한 결정립의 변형상태를 확인하였다.

2. 실험 및 결과

본 시험에 사용된 시편은 표 1.과 같이 8 μm , 15 μm 및 23 μm 으로 한전원자력연료(주)의 상용 시방에 맞게 제조되었고 품질보증 및 분석이 시행되었으며 그림 1.은 제조후 미세조직을 보여주고 있다. 3종의 시편은 하나로 OR-4 조사공에서 601일의 유효연소기간을 거쳐 3개의 붕평균 33,600 MWd/MTU의 연소결과를 보였으며, 한국원자력연구원 PIEF에서 일련의 조사후 시험이 시행되었다. 각 산화 가열시편은 그림 2.와 같이 외곽부, 중간부 및 중심부로 150 mg 정도 절취되어 사각의 고형체로 이용되었으며, 본 시험에서는 피복재가 붙어 있는 외곽부를 이용하여 고온 산화시험이 진행되었다.

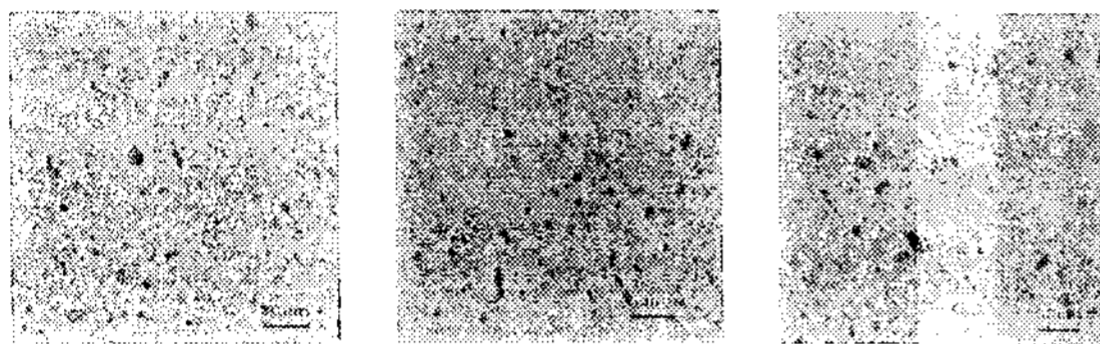
표 1. 고연소도용 큰결정립 UO_2 소결체 제조방법 및 구성

Parameter	Powder Composition	Grain size	Fabrication Methods
Test rod 1	88 ^{w/o} UO_2 powder + 12 ^{w/o} U_3O_8 powder	8 μm	Commercial Specification
Test rod 2	88 ^{w/o} UO_2 powder + 7 ^{w/o} U_3O_8 powder + Additive 5 ^{w/o} U_3O_8 seed	15 μm	Commercial Specification
Test rod 3	88 ^{w/o} UO_2 powder + 7 ^{w/o} U_3O_8 powder + Additive 5 ^{w/o} U_3O_8 seed	23 μm	Annealing for 46hr

시험방법은 3종의 큰결정립 사용후 소결체 150 mg 외곽부분을 핫셀 내에 있는 사용후 핵연료 가열 시험장비(PIA)를 이용하여 표준공기 100 ml/min와 헬륨 50 ml/min 산화분위에서 분당 10°C씩 500°C까지 상승시킨 후 5시간의 산화분위기를 유지하였다. 3종에 대한 시편은 동일조건에서 고온 가열되었으며, 실시간 Beta Counter와 Gamma Counter로 측정되었다. 측정 후 전자주사현미경을 통하여 미세조직의 변화를 관찰하였다.

시험결과 8 μm , 15 μm 및 23 μm 에서 방출된 핵분열기체 Kr-85는 그림 3.과 같은 결과를 보였다. 8 μm 의

결정립 소결체는 현재 국내 발전소에서 사용되고 있는 표준연료로 한전원자력연료(주)에서 공급받은 소결체로 기준 시편의 역할은 한다. 8 μm 소결체를 기준으로 15 μm의 큰결정립 소결체의 경우 고온산화에 따른 Kr-85 방출량이 67%이었고, 23 μm의 경우 65% 정도이었다. 결정립크기가 핵분열기체의 방출이 상대적인 결과를 보이지 않는다. 실제 결정립 크기가 커진다고 해서 핵분열기체의 방출량이 상대적으로 커지지 않음을 확인할 수 있다. 아울러, 결정립 성장에 따른 기포의 모양이나 크기는 제조방법에 따라 다양하게 나타나고 있으며 결정립 크기만이 핵분열기체의 방출을 억제하는 요소로 볼 수 없다. 특히 그림 4와 같이 미세조직 관찰결과에 의하면 가열온도와 장시간의 소결로 제조된 큰결정립 소결체의 경우 기포의 크기가 크게형성되어 소결체의 열전달이나 크립에 좋은 영향을 미치지 않으며, 과도조건에서의 불리한 영향을 미칠 수 있을 것으로 판단된다.



a) 8 μm b) 15 μm c) 23 μm
 그림 1. 조사전 큰결정립 UO₂ 소결체 미세조직

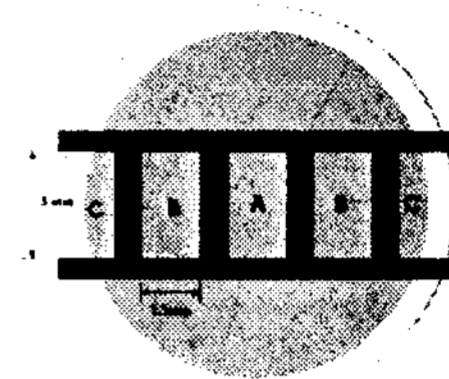
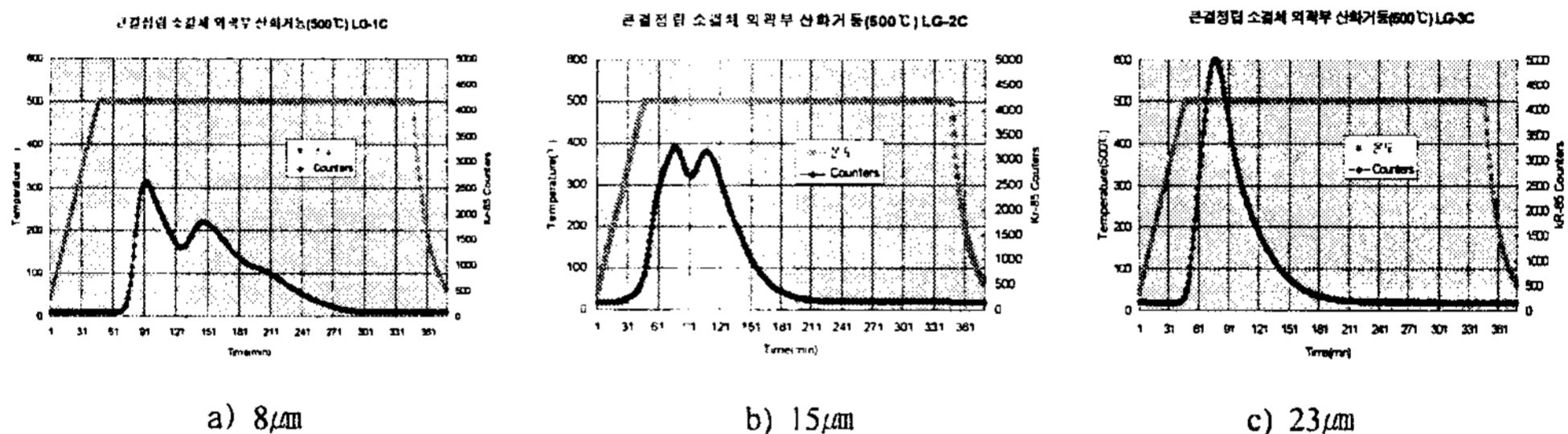


그림 2. 조사후 큰결정립 소결체 시편절취부위



a) 8 μm b) 15 μm c) 23 μm
 그림 3. 조사후 큰결정립 UO₂ 소결체의 고온산화시 Kr-85 방출거동



a) 8 μm b) 15 μm c) 23 μm
 그림 4. 조사후 큰결정립 UO₂ 소결체의 고온산화후 미세조직

3. 결 론

핵연료의 연소과정에서 핵분열기체 방출은 소결체의 기지 내에서 경계로 이동하여 방출되는 것이 일련의 과정으로 이의 정성적인 평가는 고연소도핵연료의 개발과정에서 확인되어야하며, 특히 장기간의 연소에 따른 핵분열기체의 정량적 평가는 봉내압 등의 핵연료 안전성평가에 직접적인 영향을 미치게 된다. 고연소도용 큰결정립 UO₂ 소결체의 고온산화시험을 통하여 핵분열기체 Kr-85의 방출거동을 결정립의 크기에 따라 비교분석하였다. 기존의 상용연료인 8 μm 소결체를 기준으로 15 μm의 큰결정립 소결체의 경우 고온산화에 따른 Kr-85 방출량이 67%이었고, 23 μm의 경우 65% 이었다. 현재 15 μm의 결정립 크기가 고연소도 핵연료 적용에 적합한 것으로 판단되며, 국내기술로 개발된 U₃O₈ 종자를 이용한 결정립 성장기술이 특징적이라 할 수 있다. 추가적인 결론으로 미세조직에서도 볼 수 있듯이 산화속도가 가장 큰 500°C에서 5시간의 경과 시에도 결정립의 산화속도가 크지 않은 결과를 확인할 수 있었다. 이는 향후 장기건식저장이나 처리처분의 안전성기준에 참고할 수 있는 자료로 활용이 가능할 것으로 판단된다.