

피복입자핵연료 물성-성능 DB 구축
Establishment of Data Base for Property-Performance
of Coated Particle fuel

김용수, 이효철, 임병주, 이경희
한양대학교
서울특별시 성동구 행당동 17
이찬복
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

피복입자핵연료의 물성-성능 DB 구축을 위해 피복입자핵연료 특성 자료를 수집 및 평가하였고 피복 공정에 따른 다중 피복층의 특성 및 영향을 평가하였으며 피복입자핵연료의 노내 성능 및 조사거동에 대한 자료를 분석하였다.

Abstract

In order to establish data base for property-performance of coated particle fuel, property data of coated particle fuel were collected and evaluated, properties and effects of multi-layers were evaluated as process, fuel behavior in reactor and post-irradiation examination of coated particle fuel were analyzed.

1. 서론

미래 에너지 수요에 대비하고 인류의 지속적인 발전에 기여할 수 있는 대중적 지지와 경제성 및 안전성이 획기적으로 향상된 제4세대(Gen-IV) 원자력 시스템에 대한 개발 논의가 미국을 중심으로 활발히 진행되고 있다. 이와 더불어 청정 에너지원으로서의 수소 연료 사용에 대한 관심이 높아지면서 원자력을 이용한 수소 제조 연구가 여러 나라(미국, 독일, 영국, 일본, 중국 등)에서 추진되고 있고, 가장 적합한 원자로 형태로 고온가스로 (HTGR)가 고려되고 있다. 국내에서도 원자력 선진국의 이러한 추이에 발맞추어 초고온

가스로(VHTR)에 관한 Gen-IV 연구에 참여하고 있을 뿐만 아니라 이 연구에 기반을 둔 원자로 형태를 선정하여 원자력 수소 생산을 위한 연구 개발에 본격적으로 착수하고 있다. 하지만 자료가 축적된 경수로 연구와는 달리 VHTR은 자료의 입수도 어려울 뿐만 아니라 실제 세계 어느 나라도 상용화까지 연구 개발을 완료한 나라가 없어 핵연료 재료의 선택에서부터 핵연료 시스템의 설계 및 제조까지 독자적으로 수행해야 하는 상황이다. 이러한 현실을 고려해 볼 때 피복입자 핵연료 계통을 선정하고 그 설계 및 제조 기술을 확보하며 노내 성능 시험 및 평가를 통해 독자적인 노내 성능 자료를 확보하는 것은 매우 시급한 과제이다. 그리고 이를 위해서는 먼저 피복입자핵연료의 물성과 성능에 대한 자료 수집 및 평가와 이의 data base화가 이루어져야 한다.

본 연구에서는 피복입자핵연료의 물성-성능 DB 구축을 위해 피복입자핵연료 특성 자료를 수집 및 평가하였고 피복 공정에 따른 다중 피복층의 특성 및 영향을 평가하였으며 피복입자핵연료의 노내 성능 및 조사거동에 대한 자료를 분석하였다.

2. 피복입자핵연료 특성 자료 수집 및 평가

피복입자 핵연료는 금속재를 사용하지 않고, 전부가 탄소, 흑연 및 세라믹스 등의 내열성재료로 구성되어 있기 때문에 안전성이 대단히 높고, 고연소도를 쉽게 달성 할 수 있으며, Th 이용의 가능 등 여러 면에 유리한 성질의 핵연료이다. 보통 직경 200~600 μm 이하의 미세핵 연료구(kernel)에 탄소 및 탄화물 세라믹스로 다중 코팅한 피복입자가 기본이 되고 있다. 피복입자 핵연료는 그림 1에서처럼 코팅 층의 종류 및 형태에 따라 2중 피복의 BISO 구조와 4중 피복의 TRISO 구조로 분류된다.

BISO 구조의 핵연료는 구상 우라늄, 플루토늄, 토륨의 산화물, 질화물, 탄화물의 kernel 주위를 30 μm 두께의 다공성 열분해 탄소(PyC) 완충층(buffer layer)으로 둘러싸고, 다시 그 바깥 주위를 50 μm 두께의 치밀화 PyC 층으로 에워싸는 구조를 하고 있다. 완충층과 치밀 PyC 층간에는 얇은 sealing PyC 층이 있다. 이러한 BISO 구조 핵연료는 일부 금속 핵분열 생성물(특히 Cs)에 대해서는 좋은 역할을 하지 못하기 때문에 적용에 제한을 받게 된다. 따라서 BISO 구조 핵연료로는 비교적 낮은 조사온도나 낮은 연소도를 갖는 제한된 경우에만 적용될 수 있다. 이에 대한 대안으로 제시되어 적용되는 핵연료 구조가 TRISO 이다.

TRISO 구조 핵연료는 BISO 구조의 최외각 층인 치밀한 PyC 층의 외각을 치밀한 SiC (혹은 ZrC) 층으로 감싸고 그 외각을 다시 치밀한 PyC 층으로 둘러싼 구조를 하고 있다. SiC 층의 안쪽 치밀 PyC 층을 inner pyrolytic carbon (IPyC)이라 하고, 바깥 쪽 치밀 PyC 층을 outer pyrolytic carbon (OPyC)이라고 하며, 이 PyC 층들은 조사에 의한 수축이 발생하기 때문에 등방성(isotropic)을 지녀야 한다. BISO형과 TRISO형 피복입자 핵연료의 기본적인 물성을 표 1에 나타내었다. 피복입자 핵연료의 각 층별 특성과 기능은 다

음과 같다.

열분해 탄소(PyC)

Methane(CH_4)이나 propane(C_3H_8)과 같은 탄화수소 기체를 고온($1000\sim 2000\text{K}$)에서 열분해 시켜 얻은 고체 탄소를 열분해 탄소(PyC, pyrolytic carbon), 혹은 CVD 탄소라 한다. 고온가스로 사용되는 BISO 또는 TRISO 핵연료 입자의 경우 열분해탄소는 완충층 및 치밀 탄소층에 사용된다. TRISO 입자에서 버퍼층으로 사용되는 열분해탄소는 1.0 g/cm^3 정도의 저밀도를 가지며 핵분열 반응으로 연료핵(kernel)에서 나오는 핵분열 파편의 이동을 막고 치밀 PyC 층의 손상을 방지한다. 또한 내부에서 발생하는 FP 가스와 CO 가스의 plenum 공간, 연료핵 swelling의 흡수, 연료핵 이동에 대한 완충층 등의 역할을 한다. SiC 층 양쪽에 증착되는 IPyC 및 OPyC 층들은 1.85 g/cm^3 정도의 밀도를 갖는 치밀한 구조이다. IPyC층은 SiC층을 증착할 때 사용하는 MTS(CH_3SiCl_3)에서 분해되는 염소화합물(HCl 및 Cl_2)로부터 핵연료를 보호하는 역할을 수행한다. 또한 기체상의 핵분열 생성물을 가두는 확산 장벽으로서의 역할과 함께 SiC 층의 인장응력을 감소시키는 역할을 한다. OPyC 층은 SiC 층 바깥에 위치하여 추가적인 확산 장벽으로 작용하며 외부로부터의 기계적인 충격이나 화학반응으로부터 SiC 층을 보호한다. 또한 핵연료 입자 집합체의 지지상으로 사용되는 흑연과의 화학적인 양립성을 유지하게 한다. IPyC 층과 함께 OPyC 층은 조사에 의해 수축이 일어나게 되는데 이를 통해 SiC 층을 압축함으로써 핵연료 입자 내부의 가스압력에 의해 인가되는 SiC 층의 hoop stress를 상쇄하여 핵연료 입자의 건전성을 유지하게 한다. 이때 압축응력은 PyC의 파필르 유발하거나 IPyC 층과 SiC 층 사이의 계면 분리를 일으킬 정도로 크지 않아야 한다. 이러한 조건을 만족하기 위해서는 PyC 층들이 등방성 구조를 가져야만 하며 PyC 층의 이방성이 커짐에 따라 핵연료 피복층의 파괴 가능성은 커지게 된다.

탄화규소(SiC)

탄화규소는 낮은 중성자 흡수단면적, 우수한 고체 핵분열 생성물의 담지능력, 뛰어난 조사안정성, 높은 열전도도와 고온강도, 1900°C 까지에서 열크립 안정성 등을 갖고 있기 때문에 BISO type 핵연료의 최외각 치밀 PyC의 약점을 보완한 고온 구조 안정성 및 내방사선성 핵연료 피복층으로 TRISO type 핵연료에서 매우 중요한 역할을 수행한다. SiC의 코팅은 일반적으로 PyC 층을 코팅할 때와 마찬가지로 화학증착법을 이용하며, MTS(CH_3SiCl_3)을 원료기체로 사용한다.

탄화 지르코늄(ZrC)

SiC-TRISO 핵연료는 열적 및 내방사선 특성이 우수하여 고온가스냉각로의 핵연료로 적용되고 있으나, 1700°C 이상 고온에서 열분해와 상변태에 의하여 구조적인 안정성에 문

제가 발생하고, 핵분열 생성물인 Cs의 고온 포획력이 떨어지며, Pd와 접하면 Pd₂Si가 형성되어 부식이 발생하는 약점이 있다. SiC의 Pd에 대한 부식에 대해서는 SiC 층이나 SiC+C층의 증착이 보고 되고 있다. 따라서 고온 특성을 향상시키기 위한 개량형 핵연료의 필요에 따라 SiC를 대신할 대체제로 ZrC를 증착한 Zr-TRISO가 제안되었다.

SiC는 약 1800°C에서 승화되는 반면 ZrC는 용융온도가 3540°C 이고, 탄소와 2850°C에서야 공용 된다. 따라서 ZrC는 SiC에 비하여 고온 안정성이 더 우수하며 이에 따라 허용 핵연료 최대온도가 더 높아지므로 원자로의 안정성을 향상시킬 수 있는 것이다. 아울러 UO₂의 핵분열로 방출되는 산소와 반응하므로 산소 포획자 구실을 하여 핵연료 내의 압력증가를 방지할 수 있다. 또 ZrC에서는 핵분열 생성물인 Cs 등의 고온 확산이 어려워 핵분열 생성물의 담지 능력이 매우 우수하다.

3. 피복 공정에 따른 다중 피복층의 특성 및 영향 평가

피복입자핵연료의 피복은 화학증착(chemical vapor deposition)법으로 이루어진다. 화학 증착법은 반응물들이 기체상태에서 화학반응을 일으킨 후, 그 생성물이 기판에 증착되는 반응인 homogeneous 반응과 반응기체가 기판에 흡착된 후, 원료기체나 기판에 가해진 에너지에 의해 화학반응을 일으켜 생성물이 기판에 증착되는 heterogeneous 반응에 의하여 기판 표면에 증착되거나 미세분말을 만드는 공정이다. 반응을 위한 활성화에너지를 가하는 방법에 따라 가장 일반적인 thermal CVD외에도 plasma-enhanced CVD, photochemical CVD, laser-induced CVD, electron-beam assisted CVD 등이 있다.

Homogeneous 반응은 반응기체의 과포화도 (degree of supersaturation)가 크고, 반응온도가 높아지면 나타난다. Homogeneous 반응에 의하여 얻어지는 증착물은 분말형태의 다고성 조직이고, 기판과 접착력이 약한 반면 Heterogeneous 반응은 일반적인 치밀한 증착조직을 필요로 하는데 이용되는 공정이다.

그림 2는 유동상(fluidized bed)이라 불리는 증착로를 이용한 화학증착(CVD)공정에서 유동상의 구조를 나타내었다. 유동상의 원리는 나팔상의 흑연반응관에 연료 핵 혹은 피복도층의 입자를 장입하여 고온으로 가열된 반응관의 하부 nozzle로부터 입자유동 가스(Ar) 및 분해가스(아세틸렌, 프로필렌, MTS (methyltrichlorosilane)+수소 등)를 함께 불어넣어 분해가스를 열분해시켜 분리된 탄소, 실리콘 원자를 유동하고 있는 연료핵 표면에 증착시키는 것이다. 이때 생성되는 피복층의 구조 즉, 밀도, 결정입자의 배향 등은 표 2와 같이 원료가스의 종류와 분압, 유동층의 온도, 핵연료의 양과 크기 등에 영향을 받는다. 그림 3은 증착조건에 따른 증착층의 미세구조의 변화를 나타낸 것으로 증착 조건에 따라 rounded (domed) top 구조, faceted 구조 및 angular (equiaxed) grain 구조로 대별할 수 있다. 기상 원료물질의 과포화도가 낮고 증착표면에 흡착된 원료물질들의 이동도가 클 때 rounded top 구조가 얻어지고, 과포화도가 증가하고 이동도가 낮아지면 faceted 구조가

얻어지며, 기상에서의 과포화도가 더욱 증가하고 표면의 이동도가 더욱 낮아지면 표면에서의 핵생성 속도가 증가하여 equiaxed grain 구조가 얻어진다. 각 층별로 피복 공정에 따른 영향을 살펴보면 다음과 같다.

Buffer 피복층

버퍼층은 CVD방법으로 1435~1565℃에서 아세틸렌의 열분해로 코팅된다. 열분해시의 조건은 코팅반응 부위의 온도에도 영향을 미친다. 주요한 버퍼층 코팅의 작업변수는 표 3과 같다. 아르곤 가스는 코팅과정 중 carrier gas이며 질소는 탄화물 연료핵과 반응하여 질화물을 형성하므로 사용해서는 안된다. 여기서 버퍼층의 기공율과 두께는 중요한 코팅층 특성으로서 기공율은 반응온도, 코팅속도, 반응 표면적, 입자 크기, 가스 유속과 조성 등에 의해 조절된다.

IPyC 피복층

고밀도, 등축정의 PyC 층이 버퍼층 위에 코팅된다. 이 층은 고밀도 층이어서 다음 공정인 SiC 코팅에서 연료핵이 HCl에 부식당하는 것을 방지해 준다. 통상 1280℃에서 프로필렌의 열분해로 코팅하나 아세틸렌과 프로필렌 혼합가스를 사용하기도 한다.

일반적으로 열분해탄소의 증착조건은 결정입자의 집합상태와 그 크기에 영향을 미친다. 저온 저속도로 증착을 했을 경우에는 증착면에 평행한 증착조직이 생기며, 고온 저속도로 증착을 하면 증착 후에 현저한 결정 성장이 생겨 증착면에 수직인 주상조직 혹은 입상조직이 생긴다. 고속증착의 경우에는 통상 특징이 있는 조직이 생기지 않는 경우가 많은데, 이는 기체상 핵생성이 지배적이어서 증착된 결정입자의 분포가 등방적(isotropic)으로 되기 때문이다. 이 조직을 등방조직이라고 하며 실용핵연료의 피복조건의 하나가 된다. 최적의 등방성 조직은 코팅속도가 빠를 때, 또 반응온도가 높을 때 얻어진다. 고밀도를 원할 경우는 반응온도를 낮추면 되는데 이때는 이방성 조직이 얻어진다.

SiC 피복층

핵분열 생성물질의 확산차폐막인 이 SiC 피복층은 연소동안 발생하는 핵분열 생성물질에 의한 내부압력에 견딜 수 있는 충분한 강도를 지녀야 한다. SiC 피복층에 있어 관리해야 할 중요한 특성으로는 Thickness, Strength, Density, Grain size and Orientation, Crystal phase, Surface morphology 등이 있다. 이러한 여러 가지 특성들을 고려할 때 알려진 최적의 공정조건으로는 1572℃의 반응온도에서 비교적 느린 코팅속도로(<0.4 μ m/min)로 피복하는 것이다.

OPyC 피복층

OPyC 피복층은 의부로부터 SiC 층을 보호하고, 동시에 핵분열 생성물질의 확산을 방

지한다. 이 피복층의 가장 중요한 특성은 결정학적 등방성으로 완전한 등방성이라야 SiC 피복층에 균일한 압축력을 가할 수 있다. 이 층은 또한 연소중에 구조적 건전성을 유지해야 하며 기공율도 낮아야 한다. 통상 아세틸렌과 프로필렌 혼합가스로 코팅하며 이를 사용하는 이유는 코팅 시 발열 및 흡열 반응을 적절히 조절할 수 있어 코팅온도의 변화를 작게 할 수 있기 때문이다.

4. 피복입자핵연료의 노내 성능 및 조사거동 평가

가. FP (핵분열 생성물) 방출

정상 상태시 핵연료 건전성은 핵연료 compact 및 핵연료체의 파손, 핵연료봉 굴곡, FP 방출 등을 종합해서 판단되나, 특히 HTGR 핵연료의 제일 중요한 문제는 조사 중의 FP 방출이다. FP 방출의 원인은 다음 3가지를 들 수가 있다.

- 피복층 파손 : 제조 및 중성자 조사에 의해 발생
- U 오염 : 원료중 천연 U의 오염, 제조시 농축 U의 오염
- 피복층 확산 : 조사 중인 연료핵, 피복층에 오염된 U로부터의 FP 확산

금속 FP의 방출

FP기체의 대부분은 짧은 반감기의 핵종이며, 피복층 확산과정에서 거의 소멸되기 때문에 FP기체 방출에 미치는 피복층 확산의 영향은 적다. 금속 FP는 긴 반감기를 가지며, FP기체에 비해서 피복층 중의 확산계수가 크기 때문에 피복입자로부터 금속 FP의 방출이 문제 되는 경우가 많다. 금속 FP 방출의 경우 회토류, 알카리토유 및 Pd를 제외한 백금족 FP는 산화물 핵연료에 안정하게 고정되기 때문에 산화물 연료핵을 사용하는 경우는 이러한 FP방출에 대해서 거의 문제가 없으나 Cs, Ag 및 Pd는 다음에 서술하는 것과 같은 문제를 야기하므로 주의해야 할 핵종이다.

SiC 및 PyC층의 Cs 확산계수(그림 4)를 비교하면 PyC 층의 확산계수가 SiC에 비해서 약 100배 정도 크다. OPyC 및 IPyC층이 건전해도 SiC층에 미소 crack등의 결함이 있으면 ^{137}Cs 과 ^{134}Cs 가 방출될 수 있다는 것을 의미한다. 그러므로, Cs방출을 억제하기 위해서는 SiC층의 건전성이 대단히 중요하다. 독일에서는 UO_2 핵연료에 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{SiO}_2$ 를 첨가해서 Cs를 연료핵에 고정하여 그 방출을 억제하는 방법이 시도되었으나, 연료핵과 피복층간의 양립성에 문제가 있어, 이 시험은 중지되었다. Ag는 비교적 긴 반감기(252일)의 동위체 ^{110m}Ag 가 있으며 SiC 및 PyC 층에서의 확산계수가 크기 때문에 ^{110m}Ag 방출은 어떤 FP 핵종보다 크다. 이 방출에 대한 효과적인 대책은 현재로서는 없으나 SiC 층을 두껍게 하면 방출을 약간 줄일 수 있는 것으로 알려져 있다. Pd는 방사선을 내지 않는

안정한 FP 핵종이나 연료핵에서 SiC 층 내면에 방출되면 Pd/SiC 반응이 생겨 저융점의 금속간 화합물을 형성해서 고온 조사 중에 SiC 층을 열화시키기 때문에 앞서 말한 Cs 방출의 원인이 된다. 최근 연구에 의하면 이러한 점에서도 ZrC 가 SiC 보다 피복층으로서 더 우수하다는 결과가 나왔다. ZrC는 용융온도가 3540°C 이고 고온에서 화학적으로도 안정하다. 금속 FP 중 Pd은 SiC 층을 부식시켜 건전성에 큰 피해를 주지만, ZrC층의 경우 이러한 문제가 발생하지 않는다. 그림 5은 일본 원자력 연구소의 실험 결과로서 ZrC 내에서의 확산계수가 SiC내에서의 값보다 약 100배가량 작다는 것을 보여준다.

FP기체의 방출

중성자 조사 중의 FP기체 방출거동은 핵연료 건전성의 판단척도가 되기 때문에 gas-swept capsule 및 노내 가스 loop를 사용한 피복입자 핵연료의 조사시험이 각 국에서 널리 행해져 왔다. 특히 FP기체 방출은 피복층 파손과 U 오염의 주요 원인이 되기 때문에 이것을 개선하는 것이 과제이다. 구상핵연료의 gas-swept capsule 조사시험에서, FP기체 방출율(R/B : (Release rate)/(Birth rate))은 $10^{-10} \sim 10^{-9}$ 정도의 아주 낮은 값을 보이고 있다. 통상 구상 핵연료 중에 1개의 피복입자 파손이 생기면 R/B는 10^{-5} level을 나타내게 되므로 이 결과는 핵연료 중에 증착층 피복 파손은 전혀 생기지 않았다는 것을 의미한다. 따라서 조사와 함께 R/B가 점차 증가하나 이것은 오염된 천연 U의 ^{238}U 가 Pu로 변환되고 이것이 축적되어 이로 인해 R/B가 증가한 것으로 사료된다.

나. 연료핵 이동 (amoeba migration)

연료핵 이동은 피복입자가 어떤 온도구배를 가지고 연소되는 경우 피복층을 침식하면서 연료핵이 고온측으로 이동하는 현상이기 때문에 아메바 효과라고 불리고 있다. 탄화물계 핵연료에서의 아메바 효과는 탄소원자의 열확산으로 설명될 수 있으나, 산화물계 핵연료에 대해서는 몇 개의 물질이동 mechanism이 주장되고 있다. 그 중에서 실험결과를 가장 잘 설명할 수 있는 것은 그림 6에 나타난 mechanism이다.

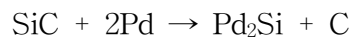
결국 이 mechanism에서는 CO기체는 그 분압의 차이에 의해 buffer층을 통해 고온측에서 저온측으로 이동하고, 여기서 탄소원자를 분리한 후 남은 산소이온은 열확산에 의해 연료핵층을 통과하여 고온측으로 되돌아간다. 따라서, CO가스의 생성이 많은 연료핵일수록 아메바 효과가 발생하기 쉽게 된다. 아메바 효과를 정량적으로 나타내기 위해 산소의 열확산을 기초로 해서 다음과 같은 연료핵 이동계수(KMC; Kernel Migration Coefficient)가 도출되고 있다.

$$KMC = T^2 \left(\frac{\Delta x / \Delta t}{dT/dx} \right) = \alpha \exp \left(\frac{\Delta H}{RT} \right)$$

여기서, T는 온도, $\Delta x \Delta t$ 는 연료핵 이동속도, dT/dx 는 온도구배, α 는 상수, ΔH 는 산소 열확산의 활성화에너지, R은 기체상수이다. KMC에 대해서는 많은 실험 데이터가 축적되어, 여러 가지 노심설계에 활용되고 있다. 그림 7은 각종 핵연료의 KCM을 비교한 것이다. 통상의 핵연료 온도영역에서는 UO_2 의 KMC가 최고로 크고, 아메바 효과가 가장 발생하기 쉽다는 것을 나타내고 있다. 미국의 핵연료 펠렛에서는 피복입자가 다른 핵연료에 비해서 조밀하게 충전되어 있기 때문에 연소 중에 큰 온도구배에 도달하는 경향이 있다. 큰 온도구배에서는 연료핵 이동속도가 가속되기 때문에 미국의 핵연료 펠렛에서는 다른 핵연료 형태에 비해서 아메바 효과가 심각한 문제였다.

다. 피복관과 FP와의 반응

산화물 연료핵에서는 고온 조사 중에 FP의 일종인 Pd가 SiC 층을 부식시키는 현상을 볼 수 있다. 이 부식현상은 저농축 U로 된 핵연료의 경우 특히 심하다. 피복입자 내부의 연료핵에서 방출되는 Pd 그 자체는 안정한 핵종이나, IPyC 층을 확산하여, SiC층 내면에 축적되어 Pd의 단괴(Nodule)를 형성해 SiC 층과 다음과 같은 반응을 일으켜 SiC층을 부식시킨다.



반응에 의해 생기는 금속간 화합물인 Pd_2Si 의 융점은 $1398^\circ C$ 이므로 핵연료 온도가 이보다 높아지면 SiC 층은 현저히 열화되어 PyC 층을 쉽게 확산하는 Cs와 같은 중요 핵종의 방출 원인이 된다. 이 부식반응에 대한 근본적인 대책은 현재로서는 없으나, 핵연료 핵중에 SiC와 같은 Pd와 결합하기 쉬운 첨가물을 가하는 방법이 연구되고 있다. 이 부식은 Pd 방출, IPyC 층중의 확산 및 SiC 층/Pd 반응의 3가지 기본적인 과정에 의하여 일어나며, 미국이나 독일에서는 이에 대해 여러 가지의 독자적인 기구를 보고하고 있으나, 일본에서는 반응의 열역학적 평가 및 PyC 층중의 Pd 확산실험을 통해 다른 두 요소 과정의 반응속도는 극히 빨라 부식속도를 좌우하는 것은 연료핵에서의 Pd 방출속도라고 결론짓고 있다. 이것은 SiC 층중의 Pd 반응깊이는 연료핵에서의 Pd 방출량과 상관이 있다는 것을 의미하는 것으로, 실제로 측정한 결과(그림 8)도 이를 입증하고 있다. 이것을 기초로 HTTR 핵연료 수명 중의 Pd 방출량을 분석한 결과 SiC 층에 침입하는 Pd 반응물의 침투깊이는 SiC 층 두께의 1/2 이하인 것으로 판단되었다.

5. 결론

현재 국제 경쟁력을 갖춘 수소생산 원자로의 연구 개발이 활발히 추진되고 있다. 이에 따라 개발 목표에 부합하는 핵연료 계통을 선정하고 그 설계 및 제조 기술을 확보하며 노내 성능 시험과 평가를 통해 독자적인 노내 성능 자료를 확보하는 일이 시급한 문제로

대두되었다. 이를 위해서는 먼저 피복입자핵연료의 물성과 성능에 대한 자료 수집 및 평가와 이의 data base화가 이루어져야한다.

본 연구에서는 피복입자핵연료의 물성-성능 DB 구축을 위해 피복입자핵연료 특성 자료를 수집 및 평가하였고 피복 공정에 따른 다중 피복층의 특성 및 영향을 평가하였으며 피복입자핵연료의 노내 성능 및 조사거동에 대한 자료를 분석하였다. 자료 수집은 우선적으로 저널이나 보고서 등의 open literature를 대상으로 수행하였으며 추가적으로 국내외 협력을 통해 입수되는 자료들을 수집 및 평가 분석하는 연구가 필요하다.

6. 참고 문헌

- [1] Kazuo Minato, Toru Ogawa, Kousaku Fukuda, Hajime Sekino, Isamu Kitagawa, Naoki Mita, "Fission product release from ZrC-coated fuel particles during post-irradiation heating at 1800 and 2000°C", J. Nucl. Mat. 249(1997)148
- [2] D.A.Petti, J.Buongiorno, J.T.Maki, R.R.Hobbins, G.K.Miller, "Key difference in the fabrication, irradiation and high temperature accident testing of US and German TRISO-coated particle fuel, and their implications on fuel performance", Nuclear Engineering and Design 222(2003)293,294
- [3] K.Minato, T.Ogawa, K.Fukuda, H.Nabielek, H.Sekino, Y.Nozawa, I.Takahashi, "Fission product release from ZrC-coated fuel particles during postirradiation heating at 1600°C", J. Nucl. Mat. 224(1995)89
- [4] K.Minato, K.Fukuda, H.Sekino, A.Ishikawa, E.Oeda, "Deterioration of ZrC-coated fuel particle caused by failure of pyrolytic carbon layer", J. Nucl. Mat. 252(1998)13
- [5] Development of TRISO coating process for HTGR fuel, KAERI/AR-652/2002
- [6] Fabrication Technology of Fuel kernel Microspheres in Coated Particle Fuel for HTGR, KAERI/AR-675/2003
- [7] Metallic Materials for High Temperature Gas-cooled Reactor, KAERI/AR-652/2002
- [8] Radiation Damage in HTGR Nuclear Graphite Core Structural Materials, KAERI/AR-661/2003
- [9] A Review on the Development of the Advanced Fuel Fabrication Technology, KAERI/AR-420/1995
- [10] K.Minato, T.Ogawa, K. Fukuda, H. Sekino, H. Miyanishi, S. Kado, I. Takahashi, "Release behavior of metallic fission products from HTGR fuel particles at 1600 to 1900°C", J. Nucl. Mat. 202(1993)47

표 1. Properties of BISO and TRISO coatings

	BISO-HTI	BISO-LTI	TRISO-HTI	TRISO-HTI
Kernel material	(Th,U)O ₂	(Th,U) O ₂ /ThO ₂	(Th,U) O ₂ /ThO ₂	UC ₂ /U-C-O
Kernel size(μm)	400	500	500	200
Batch size(kg HMO)	3	5	3	0.5
Buffer thickness				
X(μm)	80	80	75	100
V(%)	15	15	15	15
Density(g/cm ³)	1.20	1.20	1.20	1.20
Inner LTI Thickness				
X(μm)	25	-	35	30
V(%)	10	-	10	10
Density(g/cm ³)	1.05	-	1.95	1.95
Anisotropy BAF	1.10	-	1.03	1.03
Sic Thickness				
X(μm)	-	-	30	35
V(%)	-	-	5	5
Density(g/cm ³)	-	-	3.20	3.20
Outer LTI Thickness				
X(μm)	75	80	35	35
V(%)	10	10	10	10
Density(g/cm ³)	1.85	1.95	1.90	1.90
Anisotropy BAF	1.15	1.03	1.03	1.03
Coated particle				
OPyC contamination (HM/MH _{tot})	10x10 ⁻⁴	1x10 ⁻⁴	5x10 ⁻⁶	5x10 ⁻⁶
Def.Sic(HM//HM _{tot})	-	-	1x10 ⁻⁴	1x10 ⁻³

⌘ 2. Relationship between coating properties and coating conditions

External(or Input) Parameter				Internal Parameter of the Fluidized Bed	PyC Properties	
Pyrolysis	→	Gas-phase and surface reactions	→	Deposition rate	Density	
Carries gas				Efficiency	Anisotropy	
Gas concentration				Reaction zone temperature	Orientation	
Gas flow rate				Type of fluidization	Porosity	
Fluidized bed temperature				→	Carbon/hydrogen atom concentration in the reation zone	Apparent crystallite size
Geometry of fluidized bed					Layer thickness	
Loading of fluidized bed						
Bed surface						

⌘ 3. Buffer coating process parameter.

Process parameter	Range	
	Fissile	Fertile
Coating temperature(°C)	140 ± 15	1550 ± 15
Acetylene to total gas(%)	40 to 50	45 to 55
Coating rate(μm/min)	9.5 to 12	8.5 to 10

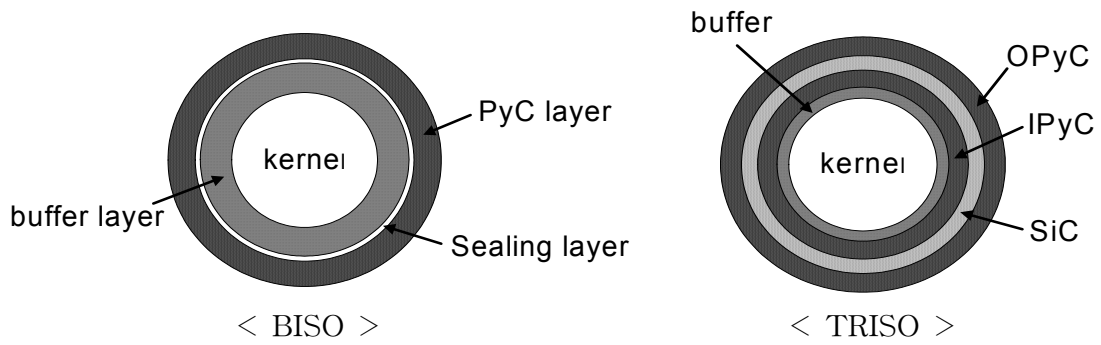


그림 1. BISO형과 TRISO형 핵연료 구조

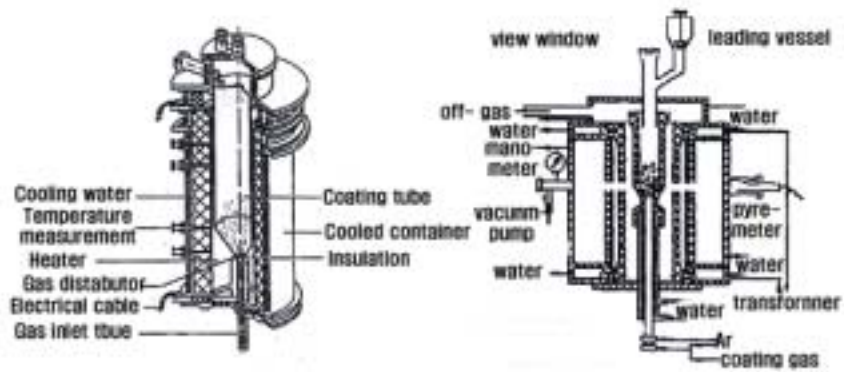


그림 2. Schematic diagram of fluidized bed.

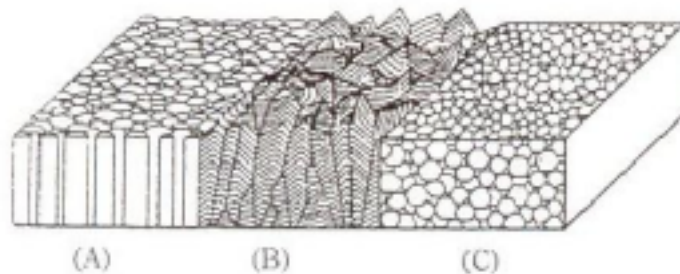


그림 3. Schematic representation of structures deposited by CVD; (A) columnar grains with domed top, (B) faceted columnar grains and (C) equiaxed grains.

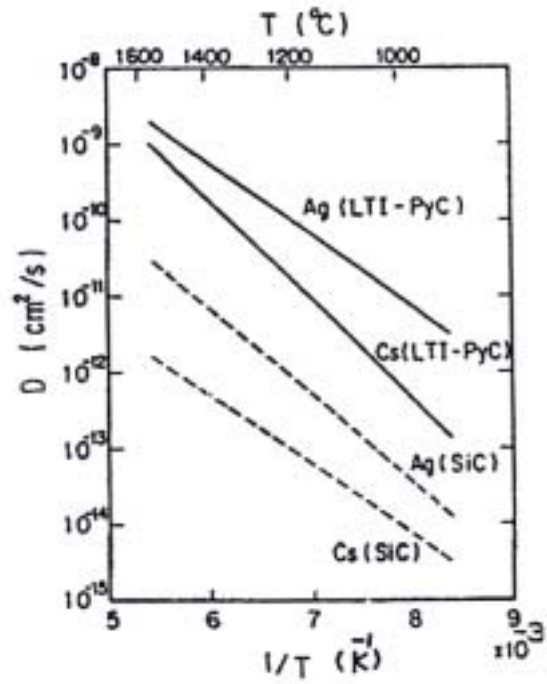


그림 4. Diffusivity of Cs, Ag in SiC and PyC layer.

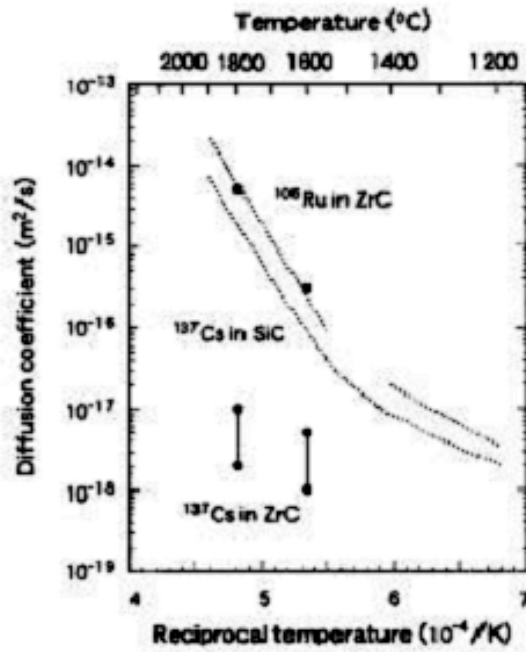


그림 5. Diffusivity of Cs, Ru in ZrC and SiC layer.

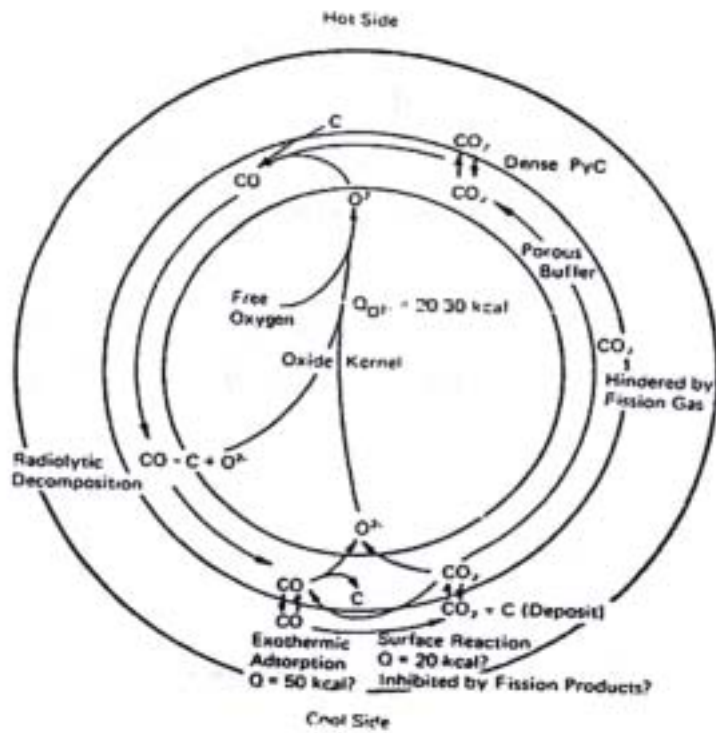
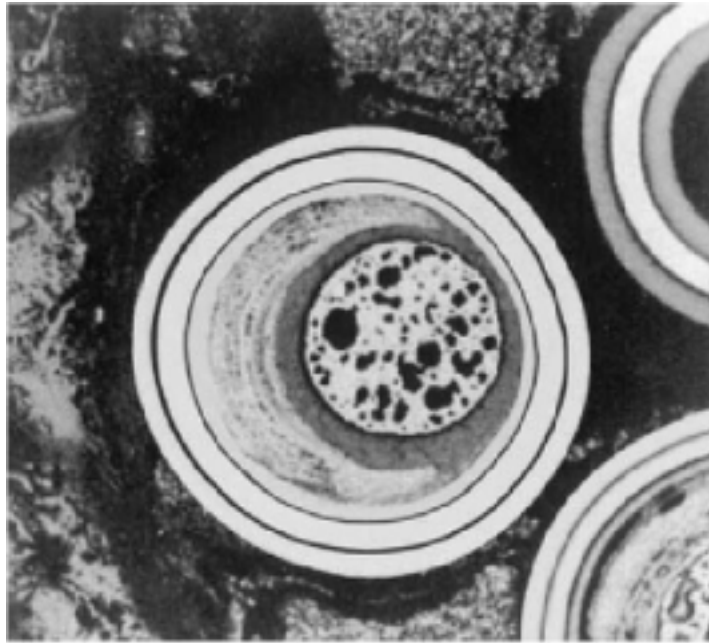


그림 6. Mechanism of amoeba effect.

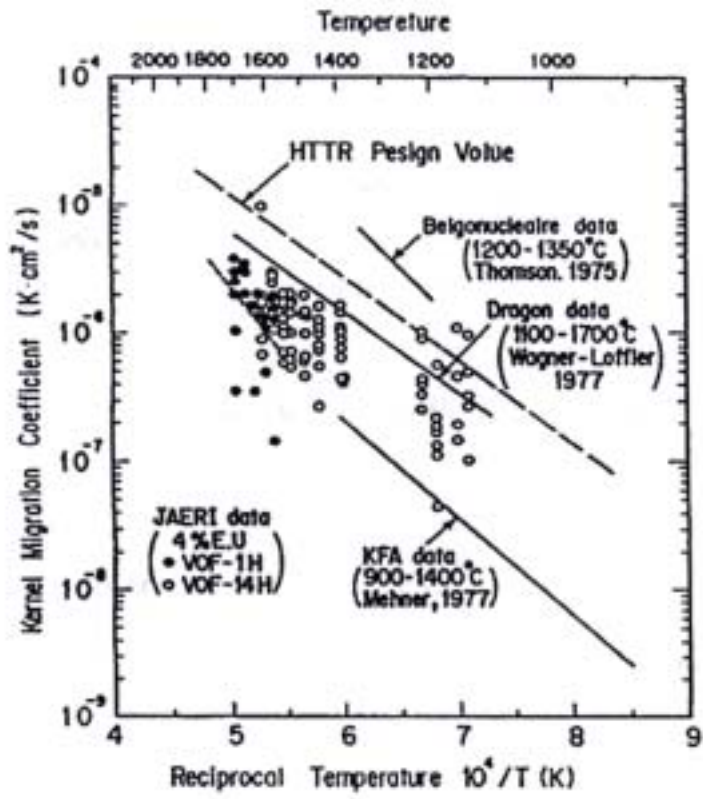


그림 7. Kernel migration coefficient.

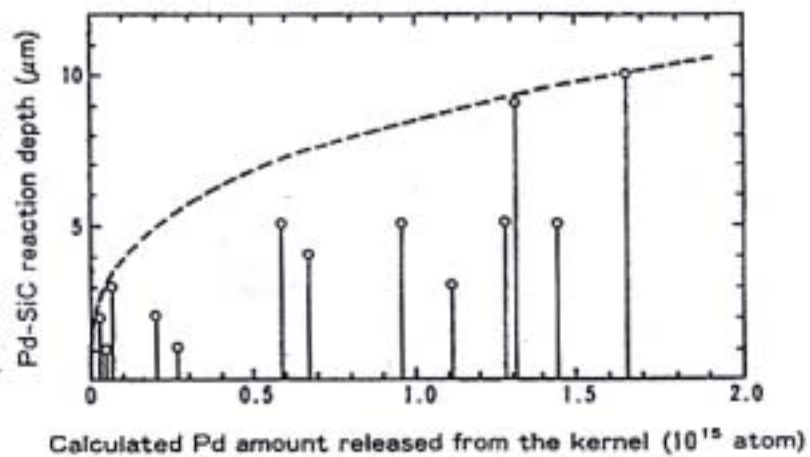


그림 8. Relationship between Pd-Si reaction depth and Pd release.