

정상출력조건에서 고연소도로 조사된 원심분무
U₃Si 분산핵연료의 노내거동에 관한 연구

A Study on the In-reactor Behavior of Centrifugally Atomized
U₃Si Dispersion Fuel Irradiated up to High Burn-up
under Normal Power Condition

김기환, 이윤상, 이충성, 정양홍, 박대규, 김창규

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

하나로 핵연료를 국산화하기 위해, 원심분무법으로 제조된 U₃Si 분산핵연료와 기존의
파쇄법으로 제조된 U₃Si 핵연료를 mini-element로 제작하여 하나로에서 정상출력조건에서
고연소도로 조사시험을 수행하였다. 원심분무 U₃Si 분산핵연료의 반응층 평균두께는 약 8
μm의 두께로 형성되었으며, 파쇄 U₃Si 분산핵연료의 평균두께와 거의 유사하였으나, 보다 균
일한 반응층을 형성하였다. U₃Si 분산핵연료의 반응층 두께 측정 결과는 핵연료 성능면
에서 대체로 허용 가능 것으로 생각된다. 분말제조 방법에 관계없이, U₃Si 분산핵연료의 핵분
열생성 기포는 불안정하고 빠른 breakaway swelling에 대한 아무런 징후 없는 가운데 미세
하고 비교적 균일하게 분포되어 있었다.

Abstract

In order to localize the nuclear fuels for HANARO, centrifugally atomized and
mechanically comminuted U₃Si mini-element fuels were fabricated and irradiated up to
high burn-up under normal power condition in HANARO reactor. The average
interaction thickness in atomized U₃Si dispersion fuel meat was observed as about 8 μm.
It was almost same thickness and more uniform comparing to that of comminuted U₃Si
dispersion fuel meats. The interaction thicknesses of U₃Si dispersion fuel meats were
generally assumed acceptable in the fuel performance point of view. The U₃Si fuel
particles were examined containing an relatively fine and uniform fission gas bubble
distribution without any indications of unstable and rapid breakaway swelling,
irrespective of powdering methods.

1. 서론

1970년대 말부터 알루미늄 기지 U_3Si 분산핵연료는 세계적으로 개발되어 왔으며, 그 핵연료 성능이 입증되어 연구로용 핵연료로 사용되고 있다. U_3Si 핵연료봉 및 집합체의 설계는 캐나다에서 이미 핵연료성능을 확인하여, 연구용 원자로인 하나로 핵연료에 적용되고 있다. 1980년대 말부터 한국원자력연구소에서는 하나로에 장전되어 사용중인 U_3Si 분산핵연료의 국산화 개발을 수행해 왔다. 국산화 개발과정에서 기존의 제조방법을 개량하여 원심분무에 의한 구형 핵연료분말을 제조하는 연구로용 개량핵연료 기술을 창안, 개발하여, 1990년대 초에 한국, 미국, 독일 및 캐나다에 발명특허를 등록하였다. 이 원심분무기술은 우라늄합금을 주조후 균질화 열처리, 파쇄 및 분쇄공정을 거치지 않고 원심분무공정을 통해 미세한 핵연료분말이 합금용탕으로부터 직접 제조되는 기술로써, 종래의 파쇄 제조법에 비해 ① 핵연료 제조공정이 단축되고, 핵연료 분말제조 수율과 생산성이 향상되며, ② 고순도의 구형우라늄합금 분말을 제조하여 핵연료분말의 품질이 향상되며, ③ 열반응에 의한 핵연료팽윤이 감소되며, ④ 핵연료봉의 열전도도가 향상되며, ⑤ 핵연료 성형시 성형압력이 감소되며 연성이 향상되는 장점을 가져왔다[1-4].

본 연구에서는 원심분무법으로 제조된 국산 개발한 연구로 구동용 U_3Si 분산핵연료의 연소성능을 기존의 파쇄법으로 제조된 U_3Si 분산핵연료와 함께 하나로에서 조사시험을 수행하여 노내 연소성능 및 건전성을 평가하고자 하였다. 그래서 원심분무법과 파쇄법으로 U_3Si 핵연료분말을 만들어, 하나로 핵연료봉과 동일하나 단지 핵연료심재 길이가 200mm로 축소된 Al-61wt.% U_3Si 국산 핵연료봉을 각각 3봉씩 6봉을 제조하였다. 그 다음 모조 연료봉과 함께 하나로의 18봉 핵연료 집합체와 동일한 시험 집합체를 구성하여 하나로 노심 외곽의 OR-4 시험공에서 정상출력조건으로 고연소도로 조사시험을 수행하고, 조사채시험시설에서 조사후시험을 수행하였다.

2. 실험방법

2.1. 축소 핵연료봉 집합체 제조

조사시험 핵연료봉은 하나로 구동 18봉 핵연료와 동일한 것으로서, 압출된 U_3Si -Al 분산형 핵연료심재(fuel core)와 핀(fin)이 달린 알루미늄 피복관 및 알루미늄 봉단마개로 설계, 제조되었다. 핵연료심재는 순수한 알루미늄 기지(matrix) 내에 원심분무 또는 파쇄 U_3Si 분말입자들을 분산시킨 것이다. 핵연료심재는 알루미늄 기지내에 U_3Si 의 미세입자의 분산형으로 이루어져 있으며, 핵연료심 물질은 Al-61wt% U_3Si 로 되어 있다. 조사시험 핵연료집합체는 6개의 조사시험봉(원심분무 핵연료심이 장입된 3개의 시험봉 + 파쇄 핵연료심이 장입된 3개의 시험봉)이 모조 핵연료봉(dummy element)과 함께 18봉 핵연료집합체 1개로 조립, 제작되었다.

2.2. 조사시험 및 조사후시험

조사시험용 축소 핵연료봉 집합체에 대하여 노심에 장전하기전에 안전성분석을 실시하였다. 노심출력 27.5 MW로 가정하고 MCNP4A 전산코드를 이용하여 여러 가지 경우에 대하여 핵연료봉 축방향 5 cm 간격으로 출력 분포를 계산한 결과, 최대 선출력은 101.06 kW/m 이었다. 연구로 핵연료 설계용 DIFAIR 전산코드에 의하면, 선출력 120 kW/m 수준에서 연료봉 중심 최대 온도는 267 °C 로, 110 kW/m 에서 262 °C로 각각 나타났다. 따라서 본 조사시험봉이 조사시험중 경험될 최대 선출력은 이 보다 낮으므로 breakaway 팽윤 관점에서의 제한 기준인 350°C 보다 낮고, 또한 알루미늄 기지의 용점 640°C보다 훨씬 아래에 있는 값이다. 또한 DIFAIR 전산코드에 의한 시험봉들의 파괴변화는 최대 연소도 95 at% 에서 약 9.3% 로 예측되었으며, 이러한 팽윤치는 연구로 핵연료 팽윤 기준치 20%에 훨씬 못미친다. 따라서 조사 시험봉에 예상되는 최대 선출력에서 시험봉의 노내 건전성 및 안전성은 충분히 유지될 것으로 평가되었다. 이와 같이 조사 안전성을 평가한 후 하나로 OR4 조사공에 장전하였다.

축소 핵연료봉 집합체는 1997년 12월에 노심에 장전되어 원자로 출력 20MW의 조건에서 1999년 6월까지 연소 시험을 수행하였다. 조사일수는 20MW로 220일 동안 조사된 것으로 평가되었다. 연소시험 결과, 하나로 노심관리 전산체계 평가한 최대 선출력은 88.9kW/m, 다발 평균 연소도는 87at% U-235, 최대 연소도는 99at% U-235이다. 조사 시험을 마친 후 하나로 작업수조에서 충분한 기간 동안 냉각시킨 후 조사재시험시설로 운송하여, 광학현미경 및 EPMA(Electron-probe micro-analysis) 등을 이용하여 조사후 시험을 수행하였다.

3. 실험결과 및 검토

그림 1은 각각 파쇄방법 및 원심분무방법으로 제조한 U₃Si 분산핵연료를 하나로에서 약 87at.% 연소도 조사후에 mini-element 중앙부의 단면을 Hi-Scope를 이용하여 관찰한 거시조직 사진이다. 그림 1에서와 나타낸 바와 같이 핵연료봉은 핵연료심재와 Al 피복재로 이루어져 있으며, 피복재는 1060 Al 합금으로 냉각능을 높이기 위해 8개의 핀이 달려 있다. 거시조직사진 관찰결과, 파쇄분말 U₃Si 분산핵연료와 원심분무 핵연료의 팽윤도는 큰 차이가 없었다. 그림 2는 각각 파쇄방법 및 원심분무방법으로 제조한 U₃Si 분산핵연료를 하나로에서 약 87at.% 연소도 조사후에 mini-element 핵연료의 단면을 관찰한 광학현미경 조직 사진이다. 그림 2에서와 나타낸 바와 같이, U₃Si 분산핵연료의 반응층 평균두께는 분말제조 방법에 관계없이, 핵연료 입자와 Al 기지물질 사이에 생성된 반응층이 약 8 μm의 두께로 형성되었으며, 핵연료 입자 내에 핵분열생성 기포 또는 이물질로 보이는 반점이 일부 존재하였으며. 그러나 파쇄분말 U₃Si 분산핵연료는 반응층이 원심분무 핵연료에 비해 대체로 불균일하였다.

그림 3은 각각 파쇄 방법 및 원심분무 방법으로 제조된 U₃Si mini-element 핵연료 파면의 약 87% 연소후 관찰한 주사식 전자현미경 조직사진을 나타낸다. 그림 3에서와 나타낸 바와 같이, 핵연료입자의 파단면은 ductile rupture를 나타내고 있었으며, 핵연료입자 및 기지간 반응층은 매우 균일하며, 약 8 μm 정도의 두께를 가지고 있다. U₃Si 분산핵연료의 핵분열생성 기포는 분말제조 방법에 관계없이, 전체적으로 U₃Si₂ 분산핵연료의 조사거동과

유사하게 기포가 균일하게 분포되어 있었으며, 평균기포크기는 약 0.4 μm 이었으며, 최대기포 크기는 약 1 μm 로 대체로 미세하였다.

알루미늄기지 분산핵연료의 성능을 두 가지 주요한 인자는 핵연료/기지간의 반응 및 핵분열 생성기포에 의한 팽윤이다. 원자로 내에서 연소중인 U_3Si mini-element 핵연료는 고온 및 중성자조사 조건으로 인해 분산핵연료 기지에 존재하는 알루미늄원자가 핵연료입자로 확산반응을 하여 낮은 밀도를 가지는 uranium-aluminide 반응생성물을 형성하게 되어, 핵연료의 팽윤을 일으키게 된다. 또한 과도한 반응은 기지에 있는 알루미늄을 소모시키고, 상당한 량의 알루미늄합금 피복재를 소모시켜 핵연료가 승온되므로, 핵연료입자/기지간의 열적 양립성은 매우 중요하다. 정상출력 조건하에서 조사 동안에, U_3Si 분산핵연료의 반응층두께는 U_3Si_2 나 U-10wt.%Mo의 그것과 큰 차이 없이 알루미늄과의 반응에 대해 대체로 안정한 거동을 보여 주었다. 또한 핵연료입자 팽윤은 핵분열 생성기체의 거동에 주로 관련된다. 정상출력으로 대체로 저온상태에서 연소되었으므로, 핵분열 생성기체의 이동도가 낮아서, U_3Si_2 나 U-10wt.%Mo에서 관찰된 것과 같이 그 기체는 작고 고립된 기포로 석출되었다. 그러한 연유로 핵연료는 조사동안에 정상적이며 안정한 체적증가를 나타내 보여주었다고 생각된다. 핵연료입자 물질이 매우 높은 핵분열생성 기체의 이동속도를 가진다면, 기포들은 성장하고 상호 연결될 것이다. 그림 2에 나타난 바와 같이, U_3Si 핵연료입자들의 상당한 수가 접촉하고 있을 지라도, 핵분열생성 기체의 기포는 많은 입자들을 가로질러 상호 연결되고, 불안정하고 빠른 breakaway swelling에 대한 아무런 징후가 없었다.

4. 결 론

하나로 핵연료를 국산화 개발하기 위해, 한국원자력(연)에서 창안된 원심분무법으로 제조된 U_3Si 분산핵연료와 기존의 파쇄법으로 제조된 U_3Si 핵연료를 mini-element로 제작하여 하나로에서 정상출력조건에서 고연소도로 조사시험을 수행하였다.

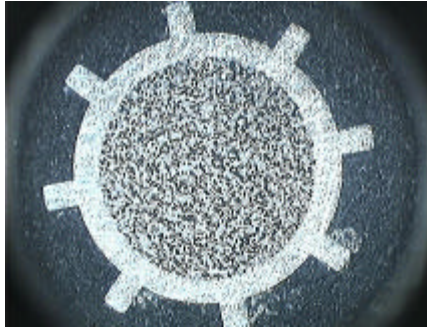
- 1) 원심분무 U_3Si 분산핵연료의 반응층 평균두께는 약 8 μm 의 두께로 형성되었으며, 파쇄 U_3Si 분산핵연료의 평균두께와 거의 유사하였으나, 보다 균일한 반응층을 형성하였다. U_3Si 분산핵연료의 반응층두께는 대체로 허용 가능하였다.
- 2) U_3Si 분산핵연료의 핵분열생성 기포는, 분말제조 방법에 관계없이, 미세하고 비교적 균일하게 분포되어 있었으며, 핵연료입자들의 상당한 수가 접촉하고 있었지만, 핵분열생성 기체의 기포는 많은 입자들을 가로질러 상호 연결되고, 불안정하고 빠른 breakaway swelling에 대한 징후가 없었다.

감사의 글

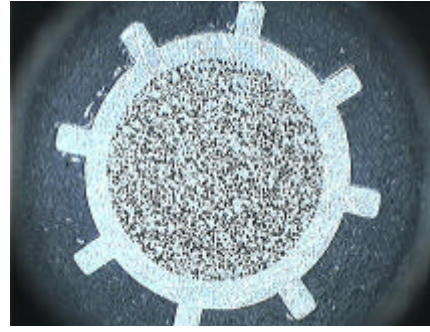
본 결과는 과학기술부의 원자력연구개발 중장기계획사업의 일환으로 연구로용 개발과제에서 수행한 것으로 연구비 지원에 대하여 감사드립니다.

참고 문헌

- 1) C. K. Kim et al., Proc. 14th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Jakarta, Indonesia, November 4-7, 1991.
- 2) W. S. Ryu, J. M. Park, C. K. Kim, I. H. Kuk, Proc. of the 17th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Williamsburg, Virginia, USA, September 18-23, 1994.
- 3) K.H. Kim, D.B. Lee, C.K. Kim, G. Hofmam, K.W. Paik, J. Nucl. Mater. 245 (1997) 179.
- 4) W. Hwang et al., J. the Korean Nuclear Society, vol. 24, No.1 (1992).

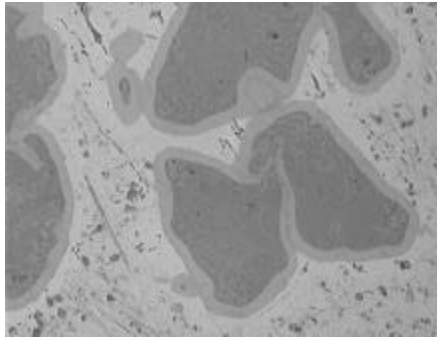


(a)

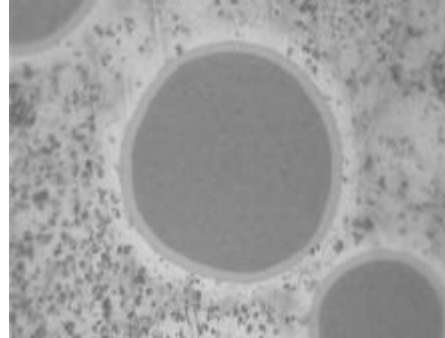


(b)

그림 1. U_3Si mini-element 핵연료 단면부의 약 87% 연소후 거시조직 사진(x20); (a) 파쇄 U_3Si 핵연료, (b) 원심분무 U_3Si 핵연료.

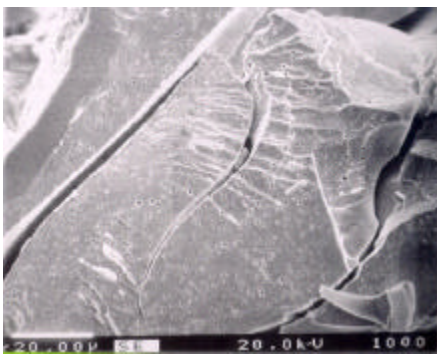


(a)

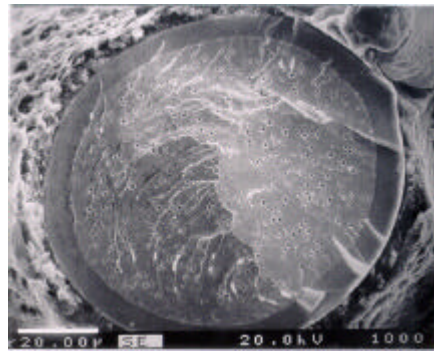


(b)

그림 2. U_3Si mini-element 핵연료 중앙 단면부의 약 87% 연소후 광학현미경 조직사진(x400); (a) 파쇄 U_3Si 핵연료, (b) 원심분무 U_3Si 핵연료.



(a)



(b)

그림 3. U_3Si mini-element 핵연료 파면의 약 87% 연소후 주사식 전자현미경 조직사진(x1000); (a) 파쇄 U_3Si 핵연료, (b) 원심분무 U_3Si 핵연료.