

고연소도 UO_2 사용후 핵연료의 고온 산화·환원에 따른 미세조직 거동

김대호, 방계건, 양용식, 송근우, 전용범, 이형권

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

조사후 핵연료 가열장비(PIA)를 이용한 고연소도 UO_2 사용후 핵연료의 시간에 따른 고온산화와 환원을 통한 미세조직의 거동변화를 관찰하였다. 본 시험에 사용된 시편은 울진 2호기에서 봉평균 57,000 MWd/tU-rod avg.까지 연소된 핵연료로 국부연소도 65,000 MWd/tU UO_2 소결체의 고품체 200 mg 정도를 사용하였다. 본 시편을 사용후 핵연료 가열시험장비(PIA)를 이용하여 핫셀 내에서 3시간의 산화시험과 15시간 산화시험 후 각각 연속적으로 환원분위기에서 1,400 °C 까지 가열하였다. 1차 시험에서 결정립경계까지의 산화를 위하여 500 °C에서 헬륨 50 ml/min, 표준공기 100 ml/min를 혼합한 산화분위기로 3시간을 유지하였고, 연속적으로 헬륨 150 ml/min 분위기에서 1,400 °C로 가열환원시험을 실시하였다. 2차 시험에서는 같은 산화분위기에서 16시간 산화를 시킨 후 연속적으로 1차 시험과 같은 환원분위기조건에서 가열시험을 실시하였다. 핵분열기체 방출거동을 알기위해 시험 전과정중에 ^{85}Kr 의 방출량을 베타 측정기와 감마 측정기를 이용하여 실시간으로 측정 하였으며, 가열시험이 종료된 후 전자주사현미경(SEM)을 이용하여 미세구조의 변화를 관찰하였다. 특히, 2차 시험에서는 산화 시간대별 시편의 SEM 시편을 만들어가며 4개의 연속시편을 제조하였다. 고연소도 UO_2 핵연료 산화시 고연소도에 따라 생성된 핵분열생성물에 의해 안정화된 U_3O_8 의 중간 형태가 화합물을 구성함으로써 산화거동을 지연시키는 현상이 발생하며 미조사 UO_2 와는 산화거동이 다르게 나타난다.

1차 시험결과 시편의 무게이득이 대략 3%로 UO_2 의 시료가 대부분 U_3O_8 으로 변화한 것으로 판단되며, 가열에 의한 이물질이 급격하게 외부로 이동한 결과를 보였다. 관찰결과 그림 1과 같이 부분적으로 표면이 녹아 흐른 흔적이 있으나 이는 환원과정을 통하여 재결정립화가 발생한 것으로 판단된다. 대부분 5 ~ 10 μm 정도의 결정립크기를 보였으며 결정립표면이 둥근 타원형의 형상을 하고 있다. 또한, 결정립경계와 표면에 핵분열생성물로 보이는 입자상이 형성되어 있는 것을 확인하였다. 2차 시험은 장기 산화과정을 거치면서 UO_2 의 시료가 대부분 U_3O_8 으로 변화되었으며 그림 2와 같이 SEM 제조를 위해 무게이득의 측정은 없었다. 단, 장기 산화과정에서 결정립 내부까지 충분히 산화되었으며 미세조직관찰결과 5 μm 이하의 결정립의 크기를 확인할 수 있었다. 두 번의 시험결과에서 1,000 °C ~ 1,200 °C 사이의 환원과정에서 핵분열기체가 급격한 방출되었으며, 이때 재구조화가 시작되는 것으로 판단된다. U_3O_8 상에서 이물질의 이동속도가 UO_2 상보다 현격하게 빠른 것을 감안하면 가열 환원과정에서 핵분열생성물을 포함한 이물질은 결정립경계 밖으로 빠져나오게 된다. 그림에서 보는 것과 같이 결정립계에 작은 알갱이들이 모여 있는 결과로 확인할 수 있었다.

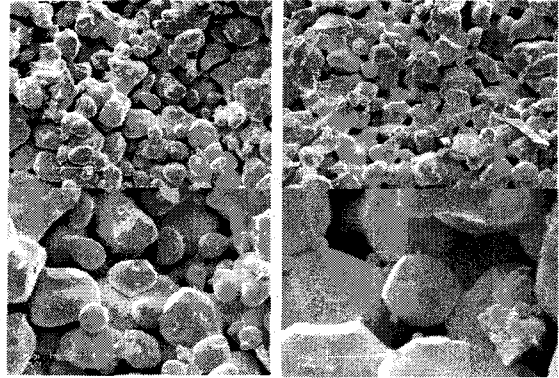
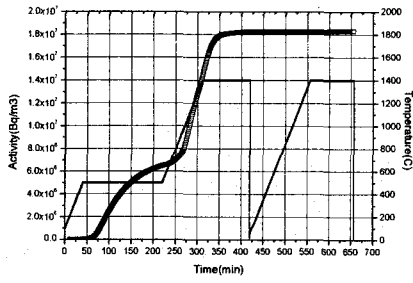
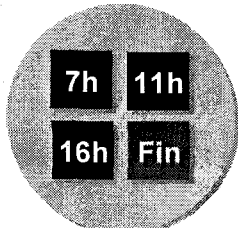
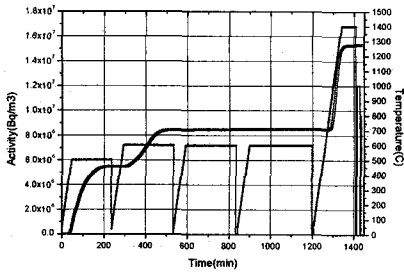


그림 1. 1차 산화. 환원 가열시험 및 미세조직 결과(3시간 산화)



SEM 시편

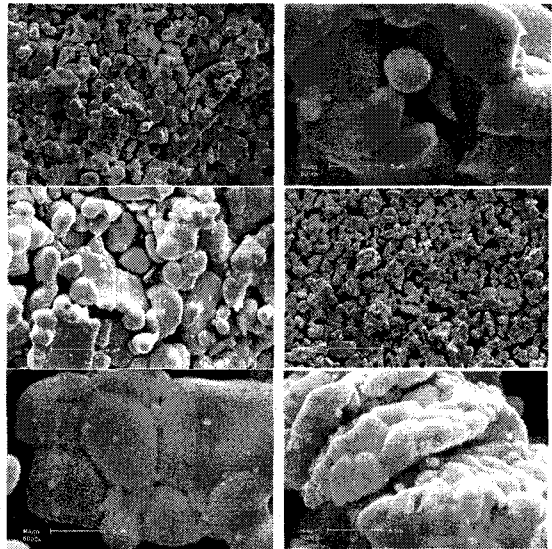


그림 2. 2차 산화. 환원 가열시험 및 미세조직 결과(16시간 산화)