

고연소도  $UO_2$  사용후 핵연료의 Pellet-Clad Bonding Layer 미세조직 관찰

김대호, 김선기, 양용식, 방제건, 송근우, 권형문  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045  
[kdh@kaeri.re.kr](mailto:kdh@kaeri.re.kr)

## 1. 서론

연료의 경제성제고와 자원이용증대에 따라 국산  $UO_2$  핵연료의 고연소도화가 진행되고 있으며, 추가적으로 출력 증강이 더불어 연구 진행되고 있다. 이러한 추세에 조사후 핵연료 가열장비 (Post-Irradiation Annealing Apparatus)를 이용한 국산 고연소도  $UO_2$  사용후 핵연료의 과도조건에서 성능분석을 위한 가열시험(안전성 시험)이 수행되고 있다. 정상상태에서 연소되는 고연소도  $UO_2$  핵연료의 pellet-clad gap closure의 원인으로는 소결체 기지내에 많은 양의 핵분열기체 축적, 수소침착과 irradiation-hardening에 의한 피복관의 연성 감소, 피복관의 크립다운과 소결체의 팽윤 등으로 짐작할 수 있다. 이러한 PCMI의 원인들로 인해 pellet-clad가 기계적 접촉을 통한 bonding이 진행된다. 피복관 및 소결체의 재료특성에 따라 bonding되는 연소도 시점은 다르겠지만, 상용 경수로  $UO_2$  핵연료의 경우 35,000 MWd/MTU에서 gap closure가 시작되어 pellet-clad bonding이 시작된다. 이러한 bonding은 반응도사고나 LOCA 사고 등의 과도상태시 소결체의 외곽에 형성된 rim 영역과 함께 치명적인 핵연료 손상을 초래할 수 있다. pellet-clad bonding 영역의 산화 및 가열시험을 통하여 pellet과 cladding을 분리하고, 미세조직을 관찰하였다.

## 2. 실험 및 결과

본 시험에 사용된 시편은 울진 2호기에서 봉평균 57,000 MWd/tU-rod avg.까지 연소된 핵연료로 국부연소도 65,000 MWd/tU  $UO_2$  소결체의 피복관이 붙어 있는 외곽고형체 180 mg(피복관 50g 포함)을 사용하였다. 본 시편을 핫셀 내의 사용후 핵연료 가열시험장비(PIA)를 이용하여 400°C, 500°C 및 600°C에서 각각 1시간씩 산화시킨 후 500°C에서 3시간의 추가 산화를 통하여 총 6시간의 산화가열시험을 실시하고 helium 분위기에서 분당 10°C/min 으로 1200°C까지 온도상승 후 30분가량 유지하면서 핵분열기체의 방출거동을 확인한 후에 감온하였다. pellet부분의 경우 대부분 rim 영역으로 산화의 진행정도가 낮고 가열중 핵분열기체의 방출은 미미하게 나타났다. 가열후 자연스럽게 분리된 clad부분과 pellet부분을 SEM 시편으로 가공하여 미세조직을 관찰하였다. 관찰결과 그림에서 보는 것과 같이 피복관의 내부 표면에서 cubic 형태의 결정립이 관찰되었으며, 이때의 결정립은 1 ~ 5 $\mu$ m의 크기로 분포하는 것을 확인하였다. 핵연료봉 제조시 21 bar의 Helium 가압에 따른 산소불순물을 16 ppm으로 제한하고 있는 점을 감안하면, 피복관 내부면의 산화층을 관찰하기 어렵다. 일반적으로 bonding 영역에서  $\alpha$ -Zr(O)x, (U, Zr) 및  $UO_2+U$ 의 삼상구조로 구분할 수 있으나, 시험결과 pellet과 clad의 접촉시 Zr과  $UO_2$  사이의 화학적 결합보다는 피복관의 creep과 고연소도에 따른 rim의 형성으로 발생된 핵분열 기체팽윤에 의한 기계적 결합이 지배적인 bonding역할을 담당한 것으로 판단된다. 본 실험시 pellet과 clad가 쉽게 분리된 이유는 pellet 외면의 rim 형성에 따라 접촉부위가 상대적으로 견고한 압력으로 결합하다가 산화와 가열에 의한 계면에너지의 손실로 인해 기계적인 분리가 발생된 것으로 판단된다. 일반적인 bonding 영역에서의 삼상구조는 물리적인 활성화에너지를 포함하여 화학적인 결합에 의해 형성하게 되지만, 핵연료봉 제조시 불순물 함유량 등의 제한조건을 감안하면 pellet-clad 사이의 화학적 결합보다는 고연소도에 따른 rim 영역에서 핵분열기체 팽윤이 기계적 결합을 주도하는 것으로 판단된다. 주기초 핵연료의 과도상태 운전에 의해 pellet 표면의 온도가 1500°C 근처까지

이르면 pellet-clad 사이에서 쉽게 화학적결합이 진행되지만, 정상상태에서는 결합층이 기계적인 원인으로 진행되는 것으로 판단된다.

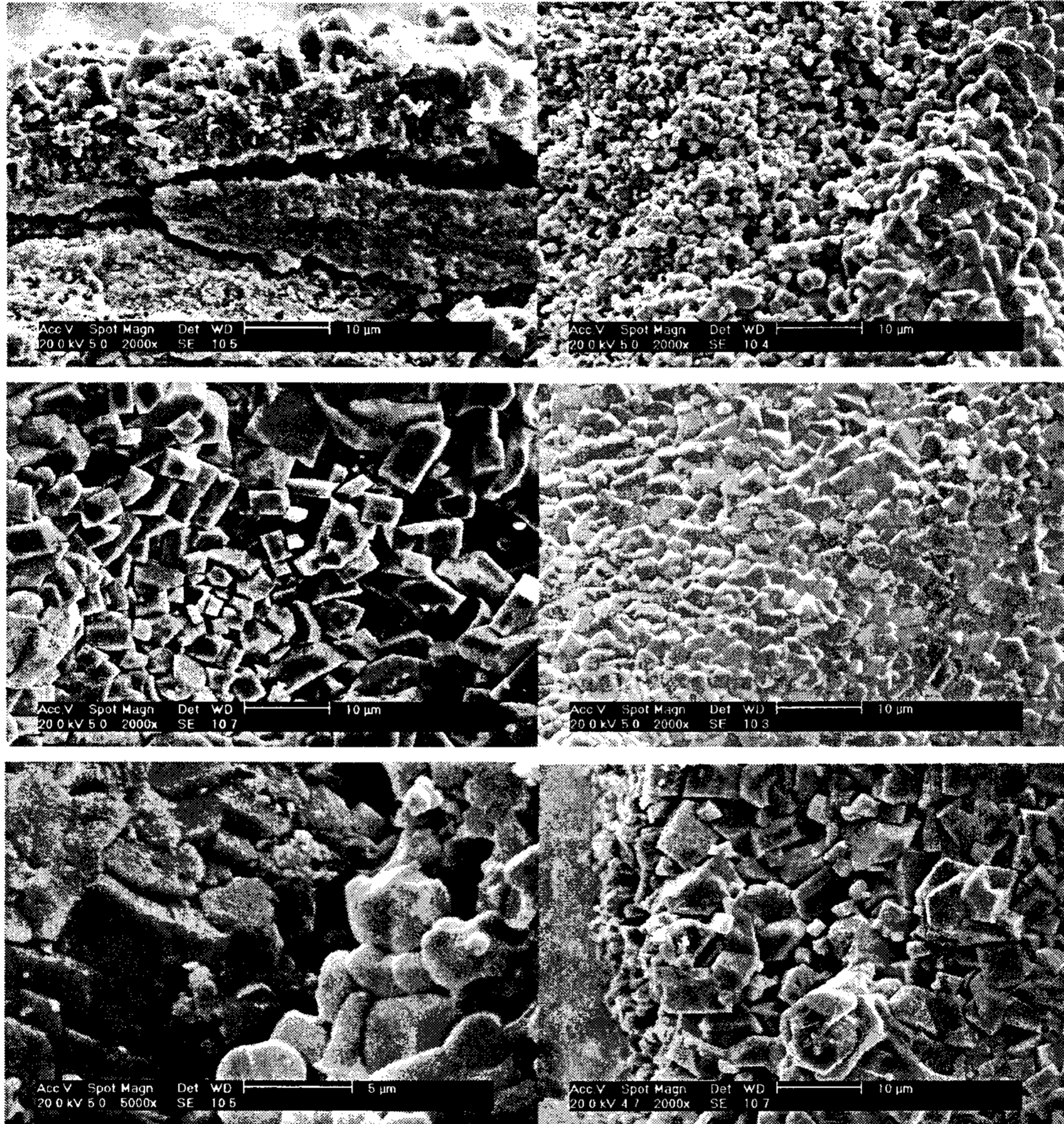


그림. 사용후  $UO_2$  핵연료의 pellet-clad bonding layer 분리 미세조직 SEM사진

### 3. 결론

핫셀내에서 PIA 장비를 이용하여 산화와 가열시험을 통해 bonding된 pellet과 cladding을 분리하여 전자주사현미경(SEM)을 통하여 미세조직을 관찰하였다. 결합된 부위는  $500^{\circ}C$  산화와  $1200^{\circ}C$  가열시험을 통하여 pellet과 cladding으로 분리되었으며, SEM 관찰결과 피복관의 내부표면에서 cubic 형태의 결정립이 관찰되었고, 이때 결정립은  $1 \sim 5\mu m$ 의 크기로 분포하는 것을 확인하였다. 소결체의 경우 rim 영역의 일부 산화된  $1\mu m$ 내외 크기의 결정립을 관찰되었다. 정상상태의 고연소도 핵연료에서는 화학적 삼상결합보다는 기계적 결합이 지배적인 것으로 판단된다.