

## 국산 고연소도 사용후 핵연료의 HBS 고온 가열시험 특성(1)

김대호, 방제건, 임익성, 김선기, 양용식, 구양현  
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045  
 kdh@kaeri.re.kr

### 1. 서 론

상용 경수로  $UO_2$  핵연료의 경우 35,000 MWd/MTU에서 gap closure가 시작되어 pellet-clad bonding이 시작된다. 이러한 접촉압력과 화학적 특성에 따라 연소도 50,000 MWd/MTU에 이르면 소결체 외곽에서 rim이 형성되고 핵분열생성물의 침착과 기계적 영향을 미치게 된다. 이러한 rim 영역의 고온 가열시험을 통하여 반응도사고나 LOCA 사고 등의 과도상태시 거동을 분석하였으며 미세조직을 관찰하였다. 국산 고연소도 사용후  $UO_2$  핵연료(울진 2호기 K23 고연소도 핵연료 (65,000 MWd/MTU.rod. local))의 1700°C 고온 가열시험을 실시하여 결정립계와 결정립 내의 핵분열기체의 방출거동 및 미세조직의 거동변화를 분석하고 사고시 방출되는 메커니즘을 확인하였다.

### 2. 본 론

#### 2.1 외곽부 고온 가열시험 조건

국산 고연소도  $UO_2$  사용후 핵연료의 외곽부(rim)영역의 1700°C 가열시험을 통하여 온도에 따른 실시간 핵분열기체 방출거동을 분석하여 과도 조건에서의 고연소도 핵연료 특성자료 생산을 생산하였다. 1차 고온 가열시험은 온도에 따른 Kr-85의 방출거동을 확인하였다. 500°C, 800°C, 1000°C, 1200°C, 1500°C 및 1700°C에서 각각 30분씩의 온도유지를 통하여 특정온도대에서 나타나는 핵분열기체의 방출거동을 확인하였으며, 2차 고온 가열시험은 시간에 따른 핵분열기체의 방출거동을 평가하기 위해 1700°C까지 연속적인 가열 조건에서 시험이 수행되었다.

1차 고온 가열시험은 160mg의 고품체 시편을 이용하고 승온조건은 분당 20°C/min씩 올려 각 특정 온도대에서 30분간 온도유지를 통해 1700°C까지 상승시켰다. 이때의 분위기는 헬륨을 150ml/min을 공급하였다. 2차 고온가열시험은 가열시험 조건은 약 120 mg의 고품체를 사용하였고 승온 조건은 분당 10°C/min씩 올려 특정 온도대가 없

이 연속으로 1700°C까지 상승시켰다. 이때의 분위기는 헬륨을 150ml/min을 공급하였다. 시험은 고연소도 핵연료의 안전성 시험을 위해 PIEF 9405 Cell에 설치 시험 중인 사용후 핵연료 고온가열시험장비(PIA)에서 시행되었다.

#### 2.2 외곽부 고온 가열시험 결과

##### 2.2.1 핵분열기체 Kr-85의 방출거동

국산 고연소도 사용후  $UO_2$  핵연료는 울진 2호기 K23 고연소도 핵연료로 B2620 위치의 국부 평균연소도가 65 MWd/kgU.rod. local로 외곽부시편의 경우 대략 130 MWd/kgU 정도의 연소도를 갖게 된다. 1차 고온가열 시험의 경우 시험결과 그림 1.과 같이 핵분열기체의 방출은 500°C, 800°C, 1000°C, 1200°C 및 1500°C에서 각각 뚜렷한 방출거동을 보이나, 1500°C와 1700°C사이에서는 Kr-85의 방출은 미미하게 나타났다. 고연소도 핵연료 소결체의 외곽부이기는 하지만 10 $\mu$ m 내외의 결정립크기와 미소크기의 rim이 분포하고 있으며, 가열초기의 500°C에서 결정립계에서의 Kr-85들이 방출되고 이후 800°C에서 가열에 의한 결정립표면에서의 Kr-85 방출 시작된다. 1000°C에서 1500°C까지 고온에 따른 결정립 표면과 얇은 층의 내면에서 고온에 의한 확산으로 Kr-85가 방출하는 거동을 보인다. 반면 1700°C에서는 Kr-85의 방출은 보이지 않았다.

2차 고온시험의 경우 1700°C까지 연속적으로 승온시킨 후 1700°C에서 약 10분씩 온도유지를 통하여 Kr-85의 시간에 따른 방출거동을 확인하였다. 2차 시험시편은 1차 시험시편에 비해 미세 크기의 rim 영역이 상대적으로 많이 분포하고 있었다. 그림 2.와 같이 가열초기의 450°C에서 시편의 표면에서 Kr-85 방출이 있었고, 약 900°C쯤에서 Kr-85의 반응이 시작되어 1200°C경에서 급격한 방출이 시작되었다. 이러한 Kr-85의 방출은 1350°C에서 약간 주춤하다가 1500°C에서 다시 급격하게 방출하여 1600°C에서 최대고점의 방출이 완료되어 이후 지속적인 감소를 보였다. 반면 1700°C에서는 Kr-85의 방출은 보이지 않는다.

시편의 외곽부의 특성상 전체 시편이 rim의 영역으로 구성되어 있지 않고 건전한 결정립이 존재하기 때문에 부위별 Kr-85의 특성을 면밀히 확인하는 것이 중요하다. rim의 경우 열적확산이 발생되지 않으며 결정립내에 pore의 압력이 높아지고 내부에 모여 밖으로의 방출을 제어하기 때문에 온도상승에 따라 Kr-85의 방출거동은 평탄한 거동을 보이지 않고 들발적인 방출거동이 나타나는 것으로 보인다.

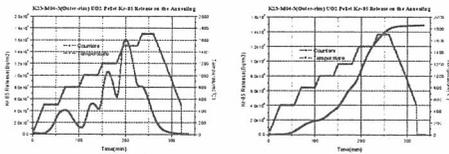


Fig. 1. 1st PIA experimental Kr-85 release behavior

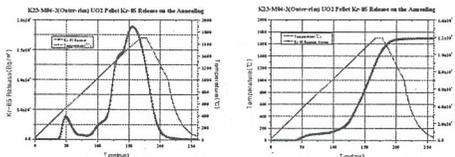


Fig. 2. 2nd PIA experimental Kr-85 release behavior

### 2.2.2 고온 가열시험후 미세조직 관찰

시편의 외곽부 특성상 전체 시편이 일반적인 결정립과 rim의 영역이 동시에 존재하고 있어 가열시험 후 SEM 시편 미세조직을 관찰결과 다양한 크기의 결정립이 분포하는 것을 확인하였다. 외곽부의 특성상 작은 결정립크기의 입자들이 가열에 의하여 상당부분 roundish하게 변형이 되었고 고온가열에 따른 내부에 있는 intragranular bubble들이 상당부분 커져 있는 상태이다. 입자가 작아지고 작아진 입자들의 표면적이 넓게 분포됨으로써 가열에 의한 핵분열기체의 방출량은 온도에 따라 급속하게 방출되는 것으로 판단된다. 외곽부에 존재한 rim영역부분은 가열에 의해 대부분 표면이 둥글게 변형되었지만 rim 내부로의 열적 확산은 일어나지 않은 것으로 관찰되었다. 이는 rim의 형성에 따라 pore의 높은 압력의 구조가 고온가열에 의해 변형되지 않는 것으로 판단된다.

1차 및 2차 고온 가열시험 후 미세조직 관찰결과 유사한 패턴의 조직변화를 알 수 있었다. 그림 3.은 1차 고온가열시험 후 미세조직사진이며, 그림 4.는 2차 고온가열시험 후 미세조직 사진이다.

미세조직에 아주 작은 미립자들은 핵분열에 의해 발생된 침전물로 EDS를 통해 핵분열생성물 중 주요감마핵종인 Ru이 포함되어 있는 것을 확인하였다.[1]

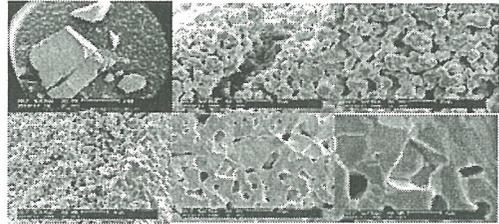


Fig. 3. Morphology after 1st PIA experiment

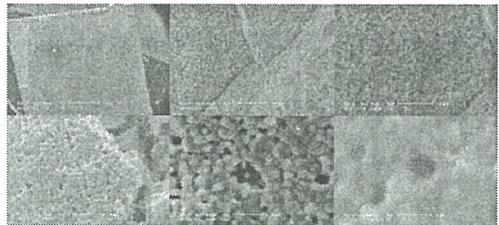


Fig. 4. Morphology after 2nd PIA experiment

## 3. 결 론

외곽부 소결체의 1700°C 가열시험을 통하여 Kr-85의 온도에 따른 연속적인 방출거동은 명료하고 급격한 방출거동을 확인할 수 있었다. 외곽부의 특성상 rim이 존재하고 Kr-85의 방출 저항성으로 나타난다. rim과 같은 HBS의 조직에서 핵분열기체는 열적확산이 발생되지 않으며, rim의 안쪽pore에 모인 핵분열기체는 pore의 높은 압력에 의해 외부로의 방출을 제어하는 것으로 보인다. 이는 온도상승에 따라 UO<sub>2</sub> 기지 내에서의 확산계수가 틀러지게 되고, 핵분열기체 및 핵분열생성물의 위치변화를 갖게 된다. 미세조직의 관찰결과 가열에 의하여 상당부분 roundish하게 변형이 되었고 고온가열에 따른 내부에 있는 intragranular bubble들이 상당부분 커져 있는 상태이며 rim의 전형적인 미세조직을 확인하였다.

## 4. 참고문헌

- [1] 김대호 외., 고연소도 UO<sub>2</sub> 사용후 핵연료의 고온가열시험특성, 한국방사성폐기물학회 2007년 춘계학술발표회.