

사용후 UO_2 소결체의 고온산화에 따른 미세조직변화

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

1. 서론

한국원자력연구원에서는 원자력연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행중인 핵연료 연소성능 평가 기술개발과제에서는 사용후 핵연료의 안전성 평가를 위한 연구가 수행 중에 있다. 일본 후쿠시마 원전의 사용후 핵연료 저장조 냉각수 유출사고에 따른 사용후 UO_2 핵연료의 거동이 초미의 관심사로 대두되고 있다. 사용후 저장조의 냉각수 유출은 사용후 핵연료의 붕괴열에 의한 고온증기로 인해 Zircaloy 피복관의 급속한 산화를 초래하고 수소발생과 피복관의 파손으로 UO_2 소결체의 외부유출이 발생할 수 있다. 공기 중에 노출된 UO_2 소결체는 고온의 분위기에서 급격한 산화거동을 보이게 되며 소결체의 건전성이 훼손되게 된다. 노출된 UO_2 소결체는 연속적인 산화를 거쳐 공기 중에 비산하게 되어 주위의 오염이 불가피하게 된다. 일반적으로 사용후 UO_2 소결체는 U_4O_9 을 거쳐 U_3O_8 으로 완전 산화과정을 겪게 된다. 사용후 UO_2 소결체는 핵분열생성물 등의 화합물을 구성하게 되어 연소도에 따른 산화거동이 다르게 나타난다. 한국원자력연구원에서는 사용후 핵연료의 안전성 평가를 위하여 고온의 UO_2 소결체 산화시험이 수행되었다. 연소도에 따른 UO_2 소결체의 고온가열 산화시험을 통하여 핵분열기체 방출과 미세조직의 특성변화를 개괄적으로 평가하였다.

2. 본론

2.1 고온가열 산화시험 시편 및 시험 조건

2.1.1 고온가열 산화시험

고온가열 산화시험에 사용된 시편은 고연소도, 중간연소도 및 저연소도 UO_2 소결체를 사용하였다. 고연소도 UO_2 소결체는 울진 2호기에서 연소된 K23 핵연료를 사용하였으며, 중간연소도 UO_2 소결체는 하나로에서 조사된 큰결정립 UO_2 소결체를 사용하였다. 저연소도 UO_2 소결체는 하나로에서 조사된 이중냉각 환형 UO_2 소결체가 사용되었다. 사용된 시편의 양은 고품체의 형태로 표 1.과

같다. 고연소도 및 중간연소도 사용후 소결체의 시편은 소결체 1개 단면을 기준으로 외곽부, 중간부 및 중심부로 구분하여 산화시험이 진행되었으나, 본 논문에서는 사고시 실제 사용후 UO_2 소결체의 외곽부가 우선적인 영향을 받게되므로 외곽부에 국한하여 제시한다.

Table 1. 고온가열 산화시험 시편

구 분	연소도 (MWd/MTU)	산화 부위	시편양 (mg)	조사조건
고연소도	65,000	외곽부	150	울진 2호기
중간연소도	33,600	외곽부	290	하나로
저연소도	10,900	전부위	290	하나로

2.1.2 고온가열 산화시험 조건 및 방법

한국원자력연구원 사용후시험시설(PIEF) 9405 Hotcell에 설치되어 있는 사용후 핵연료 고온가열 시험장비(Post-irradiation Annealing Apparatus, PIA)를 이용하여, 사용후 UO_2 소결체의 고온가열 산화 시험이 수행되었다. 울진 2호기 K23 고연소도 핵연료 소결체의 rim이 포함된 외곽부 시편을 이용하여 분당 $10^{\circ}C/min$ 씩 $500^{\circ}C$ 까지 상승시켜 $500^{\circ}C$ 에서 4시간 유지시키며 산화시험을 실시하였다. 이때 사용된 분위기는 분당 $100 ml/min$ 의 Helium 불활성가스와 분당 $50 ml/min$ 의 표준 공기 분위기를 유지하였다. 표 2.는 연소도별 고온가열 산화시험조건이다.

Table 2. 고온가열 산화시험 조건

구 분	적용온도 ($^{\circ}C$)	Holding Time	Helium ml/min	STD ml/min -Air	비고 (밀도)
고연소도	500/600	3hr/3hr	50	100	96%
중간연소도	500	5 hr	100	100	96%
저연소도	450	4 hr	100	50	96%

각 시편별 고온가열 산화시험 시 시간에 따른 Kr-85의 방출거동을 실시간 측정하였다. 실시간 방출되는 Kr-85는 FHT8000의 베타계측기를 이용하여 60 sec 간격으로 측정하고 이와 병행하여 동시에 NaL 감마계측기로 측정하였다. 산화 가

열시험 후 전자주사현미경을 통한 미세조직의 변화를 관찰하였다.

2.2 고온가열 산화시험 결과

2.2.1 고온가열 산화시험의 Kr-85 방출거동

사용후 UO_2 소결체의 산화거동은 U_4O_9 에서 U_3O_8 으로 변화하고 이때 OU ratio는 $UO_{2.25}$ 에서 $UO_{2.6667}$ 로 변화한다. 비조사 UO_2 소결체의 경우 U_3O_7 에서 U_3O_8 로 전환하며, 완전한 U_3O_8 으로 전환시 산화 Weight Gain은 3.96%이다. 고온가열 산화시험시 산소의 포텐셜은 산화에 큰영향을 주지 않는다. 그림1.은 연소도에 따른 일반적인 산화거동을 나타낸다. 다양한 산소함량의 TGA를 통한 산화시험 시에도 지배적인 영향을 미치지 않았다. 사용후 UO_2 소결체의 산화시 방출되는 Kr-85는 결정립경계가 우선하고 이후 결정립 표면과 Matrix에서 방출하게 된다. 시간에 따른 Kr-85의 실시간 방출거동은 그림 2.과 같이 각 시편별 방출거동을 확인하였다.

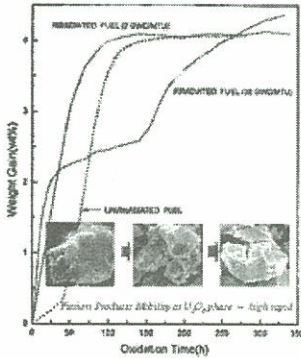


Fig. 1. UO_2 소결체의 연소도별 산화거동

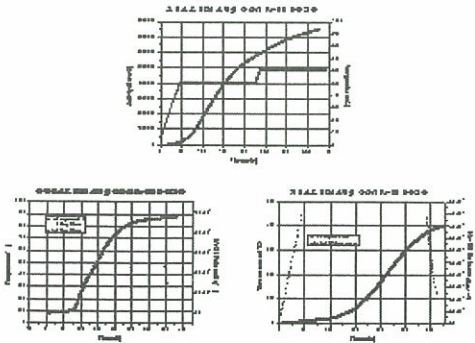


Fig. 2. 사용후 UO_2 소결체 시편의 고온 산화시 Kr-85 방출거동

2.2.2 고온가열 산화시험의 미세조직 변화

사용후 UO_2 소결체의 고온 산화후 미세조직의 변화를 통하여 사고시 산화에 따른 결정립의 변화정도를 관찰하였다. 대부분 결정립은 $5 \sim 10\mu m$ 정도의 결정립크기를 보였으며 결정립의 분리된 형상과 표

면이 산화되는 팝콘현상이 보인다. 고연소도 UO_2 소결체 산화시 고연소도에 따라 생성된 핵분열생성물에 의해 안정화된 U_4O_9 의 중간 형태가 화합물을 구성함으로써 산화거동을 지연시키는 현상이 발생하며 미조사 UO_2 와는 산화거동이 다르게 나타났다. 저연소도의 소결체 경우 아주 작은 형태의 산화입자로 분리되었으며 이는 U_3O_8 으로의 변환이 쉽게 진행되었다. 그림 3.은 연소도에 따른 고온가열 산화후 미세조직 사진이다.



Fig. 3. 조사후 UO_2 소결체 시편의 연소도별 고온 산화 미세조직

3. 결론

일본 후쿠시마 원전의 사용후 핵연료 저장조 냉각수 상실사고로 인해 사용후 핵연료의 안전성 평가가 원자력계의 관심사로 대두되고 있다. 사용후 UO_2 소결체의 고온가열 산화시험이 연소도별로 개략적인 평가연구가 수행되었다. 사용후 UO_2 소결체의 연소도별 고온 산화특성이 다르게 나타나고 있다. 고연소도 소결체의 경우 산화거동이 보이지 않는 rim이 형성되어 있고 저연소도에 비해 결정립내의 산화지연성이 보인다. 일반적으로 사고시 산화에 의한 소결체는 결정립경계를 우선적으로 산화되는 특성을 보이게 된다. 반면 저연소도의 소결체 경우 산화정도가 급격하게 진행되어 아주 작은 입자로 분리되는 것을 확인할 수 있었다. 이후 사용후 UO_2 소결체의 사고시 산화에 따른 안전성 평가가 집중적으로 연구될 전망이다. 본 산화시험을 통하여 개략적인 사용후 소결체의 연소도별 고온 산화특성을 평가하였다.

4. 참고문헌

[1] 김대호 외., 고연소도 큰결정립 UO_2 사용후 핵연료의 고온산화시험 특성, 한국방사성폐기물학회 2008년 춘계학술발표회.