

## 조사후 환형 $UO_2$ 소결체의 1700℃ 고온가열 미세조직변화

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

### 1. 서론

한국원자력연구원에서는 원자력연구개발 중장기계획 사업의 일환으로 수행중인 초고연소도 고성능 핵연료 과제에서 고출력의 이중냉각 환형핵연료가 개발 중에 있다. 이중냉각 환형  $UO_2$  핵연료는 기존의 상용 경수로 핵연료에 비해 넓은 열전달 면적과 얇은 소결체 두께의 형상으로 출력밀도 20%이상의 열출력 향상과 핵연료의 온도가 30% 이상 낮아지는 저온의 특성을 갖고 있는 핵연료이다. 이중냉각 환형핵연료의 특징으로 소결체의 변형을 최소화하고 핵분열기체를 원격하게 적게 방출하여 봉내압 등의 안전성이 확보되며, 핵연료의 안전성 기준이 되는 핵연료 용융온도의 충분한 여유를 확보함으로써 안전하고 경제성이 향상되는 고출력의 초고연소도 핵연료이다. 하나로 연구로를 이용한 이중냉각의 환형  $UO_2$  소결체의 초기연소특성을 검증하기 위해 조사시험이 2008년 11월부터 2009년 4월말까지 EFPD 93.81에 걸쳐 실시되었고, 한국원자력연구원 조사후시험시설(PIEF)을 이용한 일련의 조사후시험이 진행되었다. 초기연소거동 중 고밀화와 팽윤에 의한 소결체의 변위를 관심으로 집중적인 조사후시험 평가가 진행되었고, 본 1700℃가열시험을 통한 저연소도에서의 환형  $UO_2$  소결체의 안전성을 평가 하였다. 가열시험을 통해 환형  $UO_2$  소결체의 핵분열기체 방출거동이 평가되었고, 전자주사현미경을 통한 미세조직의 변화를 관찰하였다. 이는 최적의 소결체 제조조건을 확보하는데 활용될 예정이다.

### 2. 본 론

#### 2.1 가열시험 및 시험 조건

##### 2.1.1 가열시험

연구로에서 조사된 이중냉각 환형  $UO_2$  소결체는 표 1.과 같이 90%TD, 93%TD, 96%TD, 98%TD 및 98%(L)TD의 5종류이며, 연소도는 8,120 MWd /MTU 와 10,900MWd/MTU 두 종류이다. 가열시험에 사용된 소결체는 8,120 MWd/MTU의 평균연소도를 갖는 90%, 93%, 96%이며, 10,900 MWd/MTU의 평균연소도를 갖는 98%, 98L%이다. 여기서 98L% 소결체는 환형 피복관의 Gap 간격을 줄여 소결체의 Stress 변화를 관찰하기 위해 두께가 약간 증가시킨 소결체이다. 가열시험은 두께가 2mm정도임을 감안하여 그림 1.와 같이 횡방향의 전부위를 사용하였으며 약 200mg 정도 소결체 고형체 형태를 사용하였다.

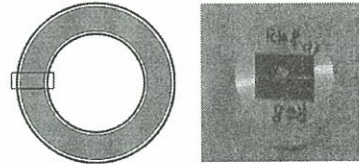


Fig. 1. 환형  $UO_2$  소결체의 가열시편 및 가열후 SEM 시편

Table 1. 시험 소결체 재료 및 체인

구 분	체 원	비 고
분말 및 농축도	IDR 2.67%	
밀 도	90, 93, 96, 98 %	96%는 상용
외 경	14.62 mm	
내 경	10.28 mm	
길 이	10.16 mm	
결정립 크기	5 $\mu$ m 이상	상용
O/U 비	2.0±0.01	
불순물 농도	상용소결체 기준시방 기준	

#### 2.1.2 가열시험 조건 및 방법

한국원자력연구원 사용후시험시설(PIEF) 9405 Hotcell에 설치되어 있는 사용후 핵연료 고온가열시험 장비(Post-irradiation Annealing Apparatus, PIA)를 이용하여, 조사후 환형  $UO_2$  소결체 5종류에 대한 1700℃ 연속 가열시험을 실시하였다. 연속가열을 통하여 온도에 따른 실시간 핵분열기체 방출거동을 분석하고, 과도 조건에서의 이중냉각 환형  $UO_2$  핵연료 특성자료를 생산하였다. 가열시험조건은 1700℃까지 분당 10℃/min으로 상승시켜 10분간 1700℃에서 온도유지 후 분당 20℃/min씩 1000℃까지 일정한 하강유지 후 상온까지 냉각하면서 Kr-85를 측정하였다. 분위기 조절을 위하여 분당 150 ml/min의 Helium 불활성가스 분위기를 유지하였다. 실시간 방출되는 Kr-85는 FHT8000의 베타 계측기를 이용하여 60 sec 간격으로 측정하고 이와 병행하여 동시에 NaL 감마계측기로 측정하였다. 측정된 핵분열기체 Kr-85는 시편의 조사전 밀도와 결정립크기를 기준으로 조사후 밀도변화와 결정립크기변화를 고려하여 방출거동을 평가하였다. 가열시험 이후 그림 1.과 같이 SEM 시편을 제작하여 미세조직을 관찰하였다. 가열시험후 미세조직은 조사후 시편과 비교하여 조직의 특성을 KR-85 방출거동과 비교평가하였다.

#### 2.2 고온 가열시험 결과

##### 2.2.1 가열시험의 Kr-85 방출거동

고온가열시험시 방출된 Kr-85의 실시간 방출거동은 소결체의 제조시 밀도와 조사후 밀도평가 및 결정

립 성장을 반영하여 초기연소도를 갖는 특성을 비교하였다. 실제 소결체의 제조시 밀도와 조사후 밀도에 차이가 발생하였으며, 이는 open porosity의 correction factor를 반영하지 않아 발생한 차이를 평가되었다. 조사후 결정립 크기의 경우 제조시 시편의 결정립크기보다 성장하였다. 이는 가열시험시 Kr-85의 방출거동에 영향을 미치게 한다.

Table 2. 가열시편의 밀도, 결정립크기 및 Kr-85방출량

Specimen	조사후 밀도	결정립크기		Kr-85 방출량	BU MWD/kgU
		조사전	조사후		
90%TD	981	2.70	3.32	146 %	8.12
93%TD	98.1	2.90	2.25	162 %	8.12
96%TD	96.1	8.6	10.60	100 %	8.12
98%TD	97.9	8.7	11.41	88 %	10.90
98%TD(L)	97.9	8.7	12.49	112 %	10.90

시편의 1700℃ 연속가열시 90%밀도를 갖는 시편의 경우 Kr-85의 방출은 약 1200℃에서 시작되었으며, 93%밀도 시편은 약 1300℃에서 급격한 방출거동을 보였다. 96%, 98% 및 98%L의 밀도시편은 약 1500℃에서 급격한 KR-85의 방출거동을 보였다. Kr-85의 방출량은 표 2와 같이 96% TD의 밀도시편을 100% 기준으로 각각의 방출결과를 보였다. 시험결과 98%TD 밀도를 갖는 시편의 Kr-85 방출량은 88%로 과도시 작은 방출량을 보임으로써 안정된 방출거동을 보였다. 또한, 핵분열기체의 방출속도는 밀도가 낮은 시편의 경우 높은 밀도 시편에 비해 빠른 방출거동을 보이며 밀도가 높은 시편이 안정된 방출속도를 보임으로써 밀도가 낮은 시편보다 안정적인 연소거동을 보일 것으로 판단된다. 그림 2는 각 시편별 조사후 환형  $UO_2$  소결체 각 시편의 Kr-85 방출거동 결과이다.

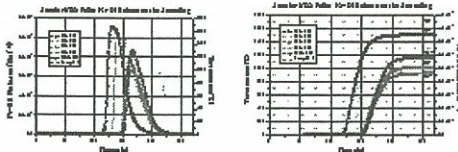


Fig. 2. 조사후 환형  $UO_2$  소결체 시편의 Kr-85 방출거동

### 2.2.2 가열시편의 미세조직 변화

사용후 소결체의 가열후 미세조직의 변화를 통하여 결정립성장의 정도 평가와 결정립 표면에서의 핵분열기체 방출 메커니즘을 예측할 수 있다. 이는 핵연료의 과도조건에서 온도상승으로 인한 소결체의 변화를 확인할 수 있으며 핵분열기체의 방출경로 등의 연구에 적용된다.

그림 3은 조사후 각 시편의 거시조직과 가열시험의 미세조직이다. 90%와 93% 밀도시편은 가열후 미세조직이 유사한 모양을 갖으며 결정립간의 공간이 상당히 크게 나타나 있다. 이는 사고시 소결체의 열적 팽윤으로 인하여 핵연료의 안전성을 저해할 수 있다. 반면 밀도가 높은 소결체의 경우 결정립의 결속력이 강하게

나타내고 있으나 상대적인 Stress를 받은 98L% 밀도시편의 경우 결정립 크기의 변화가 일정하지 않고 약간의 Crack Phase가 나타났다.

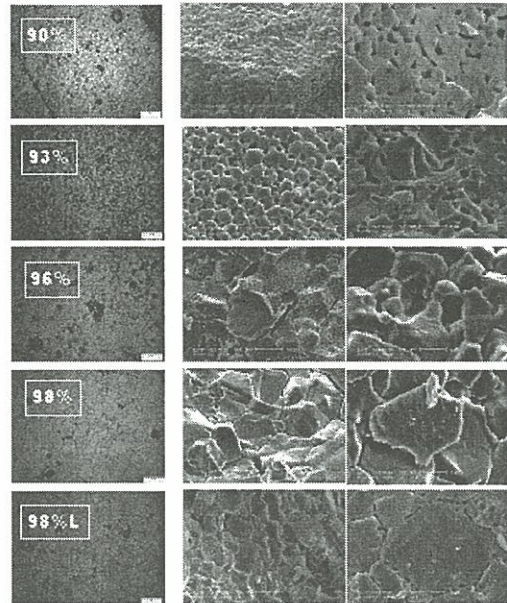


Fig. 3. 조사후 환형  $UO_2$  소결체 시편의 조사후 거시조직 및 가열후 미세조직

### 3. 결론

이중냉각의 환형  $UO_2$  소결체는 초고연소도 고성능의 핵연료 적용을 위해 원천기술개발 차원에서 연구개발 중에 있다. 환형  $UO_2$  소결체는 얇은 링의 형태로 되어있어 구조적 변형이 없도록 안정적인 노내 연소거동이 필요하다. 저연소도 조사후 환형  $UO_2$  소결체의 1700℃ 연속 가열시험을 통하여 각 시편별 핵분열기체의 방출거동과 미세조직의 변화관찰 등의 안전성 평가를 수행하였다. 시험결과 핵분열기체 Kr-85의 온도에 따른 연속적인 방출거동은 명료하고 급격한 방출거동을 확인할 수 있었으며, 98%TD 밀도시편이 핵분열기체 방출량 및 방출속도 등에서 안정적인 연소거동을 확인하였다. 또한, 전자주사현미경을 통한 미세조직의 변화에서도 결정립의 성장과 핵분열기체의 방출경로 및 가열에 의한 조직변화 등에서 안정적인 결과를 확인하였다. 이후 30,000 MWD/MTU의 중간 연소도 조사 시험을 통하여 이중냉각의 환형  $UO_2$  핵연료의 상용성을 확인할 예정이다.

### 4. 참고문헌

- [1] 김대호 외, 고연소도  $UO_2$  사용후 핵연료의 고온가열시험특성, 한국방사성폐기물학회 2007년 추계학술발표회.
- [2] 김대호 외, 이중냉각 조사후 환형  $UO_2$  소결체의 고온가열시험특성, 한국방사성폐기물학회 2010년 추계학술발표회.