2003 추계학술발표회 논문집

한국원자력학회

연소도에 따른 사용후 핵연료의 특성 및 시험평가

Test Evaluation and Characteristic of Spent Fuels due to Burn up

<u>양송열</u>, 이형권, 이은표, 서항석, 권형문, 김길수, 황용화, 엄성호, 손영준, 민덕기, 전용범, 홍권표

> 한국원자력연구소 대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

핵연료봉 피복관 특성 및 핵연료 미세 조직을 분석하기 위하여 핵연료 시편을 제작하였다. 핵연 료 연소도에 따른 핵연료봉 피복관 산화층 두께, 경도 및 핵연료 grain size를 분석하였다. 4주기 연소 핵연료봉 산화층 두께가 2주기 연소 핵연료봉 산화층 두께 보다 대체로 2배정도 두껍게 형 성되었다. 핵연료봉 내면 산화층은 얇게 형성된 반면 외면 산화층은 핵연료봉 상부로 진행함에 따 라 두껍게 형성되었다. 4주기 연소 핵연료봉 피복관 경도가 2주기 연소 핵연료봉 피복관 경도보다 약 24kg/mm² 크게 나타났으며, 2주기 연소 핵연료 grain size는 4주기 연소 핵연료 grain size보다 크게 나타났다.

Abstract

The specimens of reactor fuels were fabricated to analyze cladding characteristic and micro structure of fuel rods. The relation between oxide layer thickness, micro hardness, grain size and burn up of fuel rods were analyzed. The oxide layer of 4 cycle irradiated fuel rod was on the whole about 2 times as that of 2 cycle irradiated fuel rod. The outer oxide layer on fuel rods gradually increased to upper direction of fuel rods while the inner oxide layer on fuel rods nearly remained thin. The micro hardness of 4 cycle irradiated fuel rod showed high value by 24kg/mm² than that of 2 cycle irradiated fuel rod. The grain size of 2 cycle irradiated fuel rod was larger than that of 4 cycle irradiated fuel rod.

1. 서론

핵연료는 원자로 내에서 연소하면서 초기 신연료의 성분이 다양하게 변한다. 우선 핵분열로 인하 여 핵분열성 원소의 조성비가 줄어드는 반면, 초기에는 전혀 존재하지 않은 새로운 핵분열 생성물 및 다른 종류의 핵분열성 원소가 생성된다. 핵연료나 원자로를 구성하는 물질 등은 원자로의 가동 동안 핵연료의 연소로 인한 물리적·화학적 반응에 의해 그 성질이 변화하며, 붕괴열과 조사거동으로 인한 조직변화 및 손상 등을 일으킨다. 사용후핵연료의 조사거동은 미세 균열, 핵연료의 반경 방향에 따른 결정(grain) 및 기공(pore)의 크기변화, 입계(grain boundary)를 따른 핵분열성 기체의 bubble 생성 등의 변화가 발생한다. 이외에도 생성된 bubble의 연계에 따른 핵분열 기체의 통로 형성, 금속형태의 핵분열성 물질의 석출과 피복관 내부와 핵연료 경계면에서의 Cs 합성물의 변화 등이 있다. 피복관에 대해서는 사용후핵연료와 화학적 상호작용으로 발생하는 산화층, 방사 선에 의한 조사손상 및 결함형성 등이 중요하다. 원자력 발전의 안전성을 유지하면서 경제적 이득을 극대화하기 위한 노력의 하나로 핵연료의 연소도를 높이고 연소기간을 연장하기 위한 노력이 전 세계 원자력발전국가들에 의해 계속되어 오고 있다. 원자로의 핵연료는 연소중 고밀화와 스웰 현상이 일어나는데 고밀화는 연소초기에 핵연료내의 조그만 기공(pore)들이 소멸 또는 수축하여 부피가 감소하는 현상인 반면에 스웰링은 핵분열생성물의 생성, 핵분열기체 기포(bobble)의 성장 및 합성(coalescence)에 의하여 부피가 증가하는 현상이다. 핵연료가 원자로 내에서 연소되는 동안 연소초기에는 고밀화에 의한 핵연료 부피가 급격히 감소하다가 연소도 5~20GWD/MTU 정도에서 고밀화와 스웰링이 평형에 이르다가 그 이상의 연소도에서는 스웰링이 주도적으로 진행하여 핵연료 부피변화를 일으키는 요인이 된다.^[1-4]

원자로 핵연료의 거동 및 핵연료의 건전성을 평가하기 위하여 조사후시험을 수행하였다. 조사후 핫셀시험은 비파괴시험과 파괴시험으로 나누어진다. 비파괴시험 결과를 분석하여 상세 시험부위 시편을 절단하고, 조사핵연료 파괴시험을 수행하여 핵연료의 피복관 특성 및 핵연료의 조직을 관 찰하고 분석하게 된다.^[5-7]

본 실험에서는 상용 원자력발전소에서 연소한 핵연료봉의 연소도에 따른 핵연료봉 피복관 내, 외 면 산화막 두께 측정 및 피복관 미세 경도시험, 핵연료 소결체의 미세 조직을 분석하기 위하여 시 편을 제작하였으며, 제작한 시편에 대하여 금속조직시험을 수행하여 핵연료봉 피복관 산화층 두께 측정, 피복관 미세 경도 및 핵연료 grain size를 측정하고 분석하였다.

2. 시편제작 및 시험방법

가. 시편제작

핫셀에서 사용하고 있는 핵연료봉 미세 절단기는 미국 BUEHLER사에서 제작한 Isomet low speed saw를 핫셀내에서 원격조종기로 사용할 수 있도록 개조하였으며, 미세 절단기에 diamond blade 3" (0.15 x 76mm), 4" (0.3 x 102mm), 5" (0.4 x 127mm)를 장착하여 사용할 수 있도록 하였다. 시편을 절단할 때 열과 마찰을 최소한으로 줄이기 위하여 습식 방법으로 절단하고 세척을 편리하게 하기 위하여 물을 윤활제로 사용하고 있으며, 미세 절단기 훨(wheel)의 회전속도 700rpm으로 절단할 수 있는 시편의 최소 두께는 0.2mm정도이다. 미세 절단을 마친 시편은 mounting press 기기를 이용하여 hot mounting을 수행하는데 mounting press 기기는 덴마크 STRUERS사에서 제작한 DK-2610 predo press 기기를 핫셀내에서 원격조종기로 취급이 용이하 도록 개조하여 핫셀 내부에 설치하였으며, hot mounting press 의 온도 150℃, 압력 3.5 Kpsi에서 Ψ1 1/4" pre-mold를 사용하였다.

시편의 hot mounting을 마치고 연마작업을 수행할 때는 grinding machine의 속도 150rpm 하중 600g 중의 힘을 가하고 처음에 거친 연마제를 사용하고 점차로 고운 연마제를 사용하여 시편의 표면손상을 제거하였다. 미세 절단에서와 같이 모든 연마작업도 습식으로 수행하여 시편조직에 어 떠한 영향도 끼치지 않도록 하였으며, 시편으로부터 제거되는 금속분말 loading 현상을 억제시켰 다. 연마입자들 사이에 금속표면에서 제거된 분말이 연마제 입자사이에 끼어 들기 전에 물로 씻었 으며 연마과정에서 생성된 시편표면 마찰열을 냉각시켰다.

시편의 연마작업을 마치고 연삭(polishing)작업으로 평면을 유지하였으며, 흠집이 없는 시편 경면 을 만들어 금속조직시험을 수행하였다. 연마제로는 Al₂O₃, MgO, Cr₂O₃, Fe₂O₃ 및 diamond compound를 사용하고 있으나 본 시험에서는 diamond compound를 사용하였다. 연마는 15µm, 9µm, 6µm, 3µm, 1µm, 및 1/4µm 순으로 수행하였으며, 시편준비 작업이 끝나면 시편을 etching하고 시편조 직을 현미경 20배 배율로 관찰하여 핵연료 grain size를 측정하였다. 핵연료봉 피복관 산화층 두께 는 현미경 630배 배율로 측정하였으며, 핵연료봉 피복관 경도는 비커스 경도계로 측정하였다.

나. 시험방법

실제 원자로에서 조사된 핵연료봉에 대한 피복관 산화막 측정 및 미세 경도시험, 핵연료 조직시 험을 위해 한국원자력연구소의 조사후시험시설을 이용하여 비파괴시험 및 파괴시험을 수행하였다. 시험대상 연료봉은 국내 상용 원자력발전소에서 1주기에서 4주기동안 연소한 연료봉을 대상으로 하였으며, 연소도에 따라 산화층 두께 및 경도, 핵연료조직변화를 측정하고 분석하였다. 핫셀시험 은 크게 비파괴시험, 누설시험 및 핵분열기체포집시험과 파괴시험(화학분석 포함)으로 나눌 수 있 다. 비파괴시험은 외관검사, 제원측정, 와전류시험, 축방향 감마스캐닝, 엑스선 검사와 피복관 외면 산화층 두께 분포측정 등으로 구성되어 있다. 파괴시험은 피복관과 봉단마개 조직검사, 피복관 미 세 경도시험, 소결체 조직 검사, 밀도 측정, 연소도 측정분석, 피복관 용존 수소농도분석으로 나눈 다. 이와 같이 여러 가지의 핫셀 비파괴시험 결과를 분석 종합하여 2주기동안 연소한 3개의 연료 봉과 4주기동안 연소한 2개의 연료봉에 대한 파괴시험 상세 시험부위를 결정하고 절단기(diamond wheel cutter)로 절단하였다. 금속조직시험용 시편은 미세 절단 후 마운팅(mounting), 연삭 및 연 마와 화학적 에칭(etching)을 한 후 Sinar-F 거시현미경과 Reichert Telatom 미세 현미경으로 거 시 및 미세 조직검사를 수행하였다. 거시 금속조직시험은 20배율로 찍은 사진이 가장 선명하게 잘 나타났고, 미세 금속조직시험은 630배율의 현미경을 통해 피복관 단면의 내, 외면 산화막의 형태 및 두께를 측정하였다. 각 시편들의 피복관 단면에서 원주방향으로 내, 외면 4부위의 산화막의 두 께를 측정하였으며, 그 중에서 평균적인 산화층 두께를 사진으로 나타내었다. 그리고 4면의 산화 층 두께를 산술 평균한 값을 이 시편이 취출된 핵연료봉 길이방향 위치에서의 산화막의 평균 두 께로 가정하여 그래프로 나타내었다. 피복관 경도는 500, 1500, 2300, 3250mm에서 0도, 90도, 180 도, 270도 4면을 측정하여 그래프로 나타냈다. 핵연료조직은 핵연료봉 단면 중앙부, 중간부 및 가 장자리를 측정하였으며, 거시 금속현미경으로 grain size를 관찰하고 분석하였다.

3. 결과 분석 및 토의

Fig. 1은 2주기 연소 핵연료봉의 산화층 두께를 나타낸 것인데 핵연료봉 하단 500mm에서 3µm정 도이고 핵연료봉 상부로 진행함에 따라 산화층 두께는 증가하여 핵연료봉 상부 2,500mm에서 14 µm정도로 산화층 두께가 최대였다가 감소하는 경향을 나타내었다. Fig. 2는 4주기 연소 G23-M04 핵연료봉의 외면 산화층 두께를 나타낸 것인데 연료봉 하단으로부터 300mm부근에서 7µm정도를 보여줬다. Fig. 3은 4주기 연소 G23-M04 핵연료봉 하단으로부터 3,200mm부근의 외면 산화층 두 께 24µm를 나타낸 것이다. Fig. 4는 4주기 연소 핵연료봉의 산화층 두께를 나타낸 것인데 내면

산화층은 핵연료봉 하단 200mm에서 6µm 정도이고 핵연료봉 상부로 진행함에 따라 산화층 두께는 증가하여 핵연료봉 상부 3,000mm에서 23µm정도로 최대였다가 감소하는 경향을 나타내었다. 외면 산화층은 300mm부근에서 7µm정도로 1,000mm까지 변함이 없고 그 다음 계속 증가 하다가 핵연료 봉 상부 3,000mm에서 27µm정도로 최대였다가 차츰 감소하는 경향을 나타내었다. Fig. 5는 4주기 연소 핵연료봉 내부 및 외부 산화층 두께를 나타낸 것인데 핵연료봉 하단 750mm에서 핵연료봉 상부 3,500mm까지 내부 산화층 두께는 7µm정도인 반면 외부 산화층 두께는 핵연료봉 하단 750~ 1,000mm에서 7,4m정도이며 핵연료봉 상부로 진행함에 따라 증가하여 핵연료봉 상부 3,500mm에서 최대 21µm정도로 두껍게 형성되었다. Fig. 6은 2주기연소 핵연료봉의 경도를 나타낸 것인데 핵연 료봉 하단 500mm에서 핵연료봉 상부 3,250mm까지 핵연료봉의 경도는 250-268kg/mm 정도를 나타 내었다. Fig. 7은 4주기 연소 핵연료봉의 경도를 나타낸 것인데 핵연료봉 하단 200mm에서 핵연료 봉 상부 3,250mm까지 핵연료봉의 경도는 273-292㎏/┉ 정도를 나타내었다. Fig. 8은 2주기 연소 핵연료봉 B 및 4주기 연소 핵연료봉 C 피복관 경도를 나타낸 것인데 4주기 연소 핵연료봉 C의 경도가 2주기 연소 핵연료봉 B의 결과보다 약 24kg/빼정도 크게 나타났다. Fig. 9는 2주기 연소 핵연료봉 J44-M05의 단면 중앙부, 중간부 및 가장자리의 Grain Size를 나타내었다. Fig. 10은 2주 기 연소한 핵연료봉 위치에 따른 핵연료 grain size를 나타낸 것이다. 여기서 A, B, C 는 각각 핵 연료봉 단면 중앙부, 중간부 및 가장자리의 grain size를 의미한다. 2주기 연소 핵연료의 grain size는 핵연료봉 하단 60mm근방에서 17µm정도로 가장 컸으며, 핵연료봉 상부 3,500mm 까지 grain size fluctuation도 크게 나타났다. 핵연료봉 하부에서 핵연료봉 상부에 걸쳐 핵연료봉 grain size는 7-12µm정도를 나타내었으며, 핵연료봉 단면 중앙부, 중간부 및 가장자리 grain size의 차이 는 크지 않았다. Fig. 11은 4주기 연소한 핵연료봉 위치에 따른 핵연료 grain size를 나타낸 것이 다. 4주기 연소 핵연료의 grain size는 핵연료봉 하단 100mm근방에서 10µm정도였으며, 핵연료봉 상부 3,700mm까지 grain size fluctuation는 2주기 연소 핵연료 grain size fluctuation 보다 작았 다. 핵연료봉 하부에서 핵연료봉 상부에 걸쳐 핵연료봉 grain size는 10µm정도를 나타내었으며, 핵 연료봉 단면 중앙부, 중간부 및 가장자리 grain size 차이는 작았다. Fig. 12는 핵연료봉 위치에 따 른 핵연료봉 단면 중앙부 grain size를 나타낸 것이다. 2주기 연소 핵연료 B의 grain size fluctuation이 4주기 연소 핵연료 C의 것보다 컸다. Fig. 13은 핵연료봉 위치에 따른 핵연료봉 가 장자리 grain size를 나타낸 것이다. 2주기 연소 핵연료 B의 grain size fluctuation이 4주기 연소 핵연료 C의 것보다 컸다.

5. 결론

1) 4주기 연소 핵연료봉 산화층 두께가 2주기연소 핵연료봉 산화층 두께보다 대체로 2배정도 두 껍게 형성되었으며, 산화층은 핵연료봉 하부에서 얇게 형성되고 핵연료봉 상부로 진행함에 따라 증가하여 핵연료봉 하단으로부터 2,500-3,000mm 영역에서 산화층 두께가 최대였다가 감소하는 경 향을 나타내었다.

2) 핵연료봉 내부 산화층 두께는 핵연료봉 하부에서 상부에 걸쳐 거의 큰 변화 없이 얇게 형성
된 반면 외부 산화층 두께는 핵연료봉 상부로 진행하면서 증가하는 경향을 나타내었다.

3) 4주기 연소 핵연료봉 피복관 경도가 2주기 연소 핵연료봉 피복관 경도보다 약 24kg/md 크게 나타났다.

4) 2주기 연소 핵연료 grain size가 4주기 연소 핵연료 grain size 보다 대체로 컸으며 grain size fluctuation도 크게 나타났다. 핵연료봉 단면 중앙부, 중간부 및 가장자리 grain size의 차이는 크지 않았다.

참고 문헌

- J. R. Gibson, D. N. "Scanning Electroicroscope for Examination of Radioactive Materials" ORNL/TM-9451, 1985.
- 2. Ian J. Hastings et al., "Post-Irradiation Behavior of Uo₂ Fuel II : Fragments at 175 to 275_◦ C in Air, "Nucl. technol., 68, 40 (1985).
- 3. Ian J. Hastings et al., "Post-Irradiation Behavior of Naturally and Artificially Defected Uo₂ Fuel Elements at 250_° C in Air, Nucl. technol., 68, 418 (1985).
- 4. 민덕기 외, "가압경수로 핵연료의 연소중 스웰링 거동," 한국원자력학회 '90 추계학술발표회 논문집' pp. 239-240(1990)
- L, A. Neima and H. Ocken, "Post-Irradiation Examination of Light Water Reactor Fuel: a United States Perspective," in Post Irradiation Examination, British Nuclear Energy Society, London (1980).
- J. B. Ainscough, B. W. Old field and J. O. Ware, "Isothermal Grain Growth Kinetics in Sintered UO₂ Pellets," J. Nucl. Mater., 49, 117 (1973/74).
- 7. D. L. Douglass, "The Metallurgy of Zirconium," IAEA, p. 389 (1971).





500mm

2500mm

Fig. 1. Oxide Layer Thickness of 2 Cycle Irradiated Fuel Rod.



Pg. 1/1

Fig. 2. G23-M04 4주기 연소 연료봉 외면 산화층 Bottom from 300mm.



Pg. 1/1

Fig. 3. G23-M04 4주기 연소 연료봉 외면 산화층 Bottom from 3200mm





Fig. 4. Oxide Layer Thickness of 4 Cycle Irradiated Fuel Rod



Fig. 5. Thickness of Inner and Outer Oxide Layer of 4 Cycle Irradiated Fuel Rod.



Fig. 6. Microhardness of 2 Cycle Irradiated Fuel Rod.



Fig. 7. Microhardness of 4 Cycle Irradiated Fuel Rod.



Fig. 8. Microhardness of 2 Cycle and 4 Cycle Irradiated Fuel Rod.



Fig. 9. Grain Size Average 2 Cycle Irradiated Fuel Rod.



Fig. 10. Grain Size in each Location of Cross-Section of 2 Cycle Irradiated Fuel Rod.



Fig. 11. Grain Size in each Location of Cross-Section of 4 Cycle Irradiated Fuel Rod.



Fig. 12. Grain Size in Center of Cross-Section of 2 Cycle and 4 Cycle Irradiated Fuel Rod.



Fig. 13. Grain Size in Periphery of Cross-Section of 2 Cycle and 4 Cycle Irradiated Fuel Rod.