

## 연소도에 따른 사용후 핵연료특성

### Characteristic of Spent Fuels due to Burnup

구대서, 박성원, 서항석, 김은가, 민덕기, 홍권표, 안상복, 주용선

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요약

고리1호기 핵연료봉 피복관 특성 및 핵연료 미세조직을 분석하기 위하여 핵연료 시편을 제작하였다. 핵연료 연소도에 따른 핵연료봉 피복관 산화층 두께, 경도 및 핵연료 grain size를 분석하였다. 4주기 연소 핵연료봉 산화층이 1주기 연소 핵연료봉 산화층보다 대체로 2배 정도 두껍게 형성되었다. 핵연료봉 내부 산화층은 얇게 형성된 반면 외부 산화층은 핵연료봉 상부로 진행함에 따라 두껍게 형성되었다. 4주기 연소 핵연료봉 피복관 경도가 1주기 연소 핵연료봉 피복관 경도보다 약  $40\text{ kg/mm}^2$  크게 나타났으며 1 주기 연소 핵연료 grain size는 4 주기 연소 핵연료 grain size보다 크게 나타났다.

#### Abstract

The specimens of Kori-1 reactor fuels were fabricated to analyze cladding characteristic and microstructure of fuel rods. The relation between oxide layer thickness, microhardness, grain size and burnup of fuel rods was analyzed. The oxide layer of 4 cycle-irradiated-fuel rod was on the whole about 2 times as thick as that of 1 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 microhardness of 4 cycle-irradiated-fuel rod was bigger by  $40\text{ kg/mm}^2$  than that of 1 cycle-irradiated-fuel rod. The grain size of 1 cycle-irradiated-fuel rod was bigger than that of 4 cycle-irradiated-fuel rod.

#### 1. 서론

원자로의 핵연료는 중성자 선속, 원자로 선출력, 원자로 온도 및 압력등 원자로 운전 조건에 따라 핵연료의 이산화 우라늄이 핵반응을 통해서 많은 핵분열 에너지를 발생하게 되고 이 핵연료는 swelling 및 densification 같은 과정을 거치면서 핵연료의 조직변

화가 발생한다. 원자로 핵연료의 거동 및 핵연료의 건전성을 평가하기 위하여 조사후 시험이 수행된다[1-4]. 조사핵연료 파괴시험을 수행하여 핵연료봉 피복관 특성 및 조사 핵연료의 조직을 관찰하고 분석하게 된다[5-6].

본 실험에서는 고리1호기 핵연료봉의 연소도에 따른 핵연료봉 피복관 특성 및 핵연료 미세조직을 분석하기 위하여 핵연료봉에 대한 미세절단, hot mounting, 연마 및 연삭과정을 거쳐 시편을 제작하였다. 제작한 시편에 대하여 금속조직실험을 수행하여 핵연료봉 피복관 산화층두께, 경도 및 핵연료 grain size를 측정하고 분석하였다.

## 2. 시편제작 및 측정

핫셀에서 사용하고 있는 핵연료봉 미세절단기는 미국 BUEHLER사에서 제작한 isomet low speed saw를 핫셀내에서 원격조종기로 사용할수 있도록 개조하였으며 미세절단기에 diamond blade 3"(0.15mm X 76mm), 4"(0.3mm X 102mm) 및 5"(0.4mm X 127mm)를 장착하여 사용할 수 있도록 하였다. 시편을 절단할 때 열과 마찰을 최소한으로 줄이기 위하여 습식방법으로 절단하고 또한 세척을 편리하게 하기 위하여 물을 윤활제로 사용하고 있으며 미세절단기 훨의 회전속도 700rpm으로 절단할 수 있는 시편의 최소 두께는 0.2mm 정도이다. 미세절단한 시편은 mounting press 기기를 이용하여 hot mounting을 수행하는데 mounting press기기는 덴마크 STRUERS사에서 제작한 DK-2610 predopress 기기를 핫셀내에서 원격조종기로 취급이 용이하도록 개조하여 핫셀내부에 설치하였으며 hot mounting press 온도 150°C, 압력 3.5kpsi에서  $\Phi 1\frac{1}{4}$ " 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. 미세절단에서와 같이 모든 연마작업도 습식으로 수행하여 시편조직에 어떠한 영향도 끼치지 않도록 하였으며 시편으로부터 제거되는 금속분말 loading 현상을 억제시켰다. 연마입자들 사이에 시편 금속표면에서 제거된 분말이 연마제 입자사이에 끼어들기 전에 물로 씻었으며 연마과정에서 생성된 시편표면 마찰열을 냉각시켰다.

시편의 연마작업을 마치고 연삭(polishing)작업으로 평면을 유지하고 흠이 없는 시편경면을 만들어 정확한 조직적인 해석이 가능하게 하였다. 연마제로는  $Al_2O_3$ ,  $MgO$ ,  $Cr_2O_3$ ,  $Fe_2O_3$  및 diamond compound 를 사용하고 있으나 본 시험에서는 diamond compound를

사용하였다. 연마는 15 $\mu\text{m}$ , 9 $\mu\text{m}$ , 6 $\mu\text{m}$ , 3 $\mu\text{m}$ , 1 $\mu\text{m}$ , 및 1/4 $\mu\text{m}$  순으로 수행하였으며 시편준비 작업이 끝나면 시편을 etching하고 시편조직을 현미경 400배 배율로 관찰하여 핵연료 grain size를 측정하였다. 핵연료봉 피복관 산화층 두께는 현미경 630배 배율로 측정하였으며 핵연료봉 피복관 경도는 비커스 경도계로 측정하였다.

### 3. 결과 분석 및 논의

Fig. 1은 1주기 연소 핵연료봉의 산화층두께를 나타낸 것인데 핵연료봉 하단 500mm에서 3 $\mu\text{m}$  정도이고 핵연료봉 상부로 진행함에 따라 산화층 두께는 증가하여 핵연료봉 상부 2500mm에서 최대였다가 감소하는 경향을 나타내었다. Fig. 2는 4주기 연소 핵연료봉의 산화층두께를 나타낸 것인데 핵연료봉 하단 180mm에서 6 $\mu\text{m}$  정도이고 핵연료봉 상부로 진행함에 따라 산화층 두께는 증가하여 핵연료봉 상부 3000mm에서 최대 24 $\mu\text{m}$ 정도였다가 감소하는 경향을 나타내었다. Fig. 3은 4주기 연소 핵연료봉 내부 및 외부 산화층두께를 나타낸 것인데 핵연료봉 하단 750mm에서 핵연료봉 상부 3500 mm 까지 내부 산화층두께는 8 $\mu\text{m}$ 정도인 반면 외부 산화층 두께는 핵연료봉 하단 750-1000mm에서 8 $\mu\text{m}$  정도이며 핵연료봉 상부로 진행함에 따라 증가하여 핵연료봉 상부 3500mm에서 최대 22 $\mu\text{m}$ 였다.

Fig. 4은 1주기 연소 핵연료봉의 경도를 나타낸 것인데 핵연료봉 하단 500mm에서 핵연료봉 상부 3100mm 까지 핵연료봉의 경도는 225-245kg/mm<sup>2</sup> 정도를 나타내었다. Fig. 5는 4주기 연소 핵연료봉의 경도를 나타낸 것인데 핵연료봉 하단 250mm에서 핵연료봉 상부 3250mm 까지 핵연료봉의 경도는 260-280kg/mm<sup>2</sup> 정도를 나타내었다. Fig. 6은 1주기 연소 핵연료봉 B 및 4주기 연소 핵연료 C 피복관 경도를 나타낸 것인데 4주기 연소 핵연료봉 C의 경도가 1주기 연소 핵연료 B의 결과보다 약 40 kg/mm<sup>2</sup> 정도 크게 나타났다.

Fig. 7은 1주기 연소한 핵연료봉 위치에 따른 핵연료 grain size를 나타낸 것이다. 여기서 B, C, D는 각각 핵연료봉 단면 중앙부, 중간부 및 가장자리의 grain size를 의미한다. 1주기 연소 핵연료의 grain size는 핵연료봉 하단 60mm근방에서 17 $\mu\text{m}$  정도로 가장 커으며 핵연료봉 상부 3500mm 까지 grain size fluctuation도 크게 나타났다. 핵연료봉 하부에서 핵연료봉 상부에 걸쳐 핵연료봉 grain size는 10-12 $\mu\text{m}$  정도를 나타내었으며 핵연료봉 단면 중앙부, 중간부 및 가장자리 grain size 차는 크지 않았다. Fig. 8은 4주기 연소한 핵연료봉 위치에 따른 핵연료 grain size를 나타낸 것이다. 4주기 연소 핵연료의 grain size는 핵연료봉 하단 100mm근방에서 10 $\mu\text{m}$  정도였으며 핵연료봉 상부 3700mm까지 grain size fluctuation는 1 주기 연소 핵연료 grain size fluctuation 보다 작았다. 핵연료봉 하부에서 핵연료봉 상부에 걸쳐 핵연료봉 grain size는 10 $\mu\text{m}$  정도를 나타내었으며 핵연료봉 단면 중앙부, 중간부 및 가장자리 grain size 차는 작았다. Fig. 9는 핵연료봉 위치에 따른 핵연료봉 단면 중앙부 grain size를 나타낸 것이다. 1주기 연소 핵연료 B의 grain size

fluctuation이 4주기 연소 핵연료 C의 것보다 컸다. Fig. 10은 핵연료봉 위치에 따른 핵연료봉 단면 가장자리 grain size를 나타낸 것이다. 1주기 연소 핵연료 B의 grain size fluctuation이 4주기 연소 핵연료 C의 것보다 컸다.

이상에서 살펴본 바와 같이 4주기 연소 핵연료봉 산화층이 1주기 연소 핵연료봉 산화층보다 더 두껍게 형성되었으며 산화층은 핵연료봉 하부에서 얇게 형성되고 핵연료봉 상부로 진행함에 따라 증가하여 핵연료봉 하단 2500-3000mm 영역에서 산화층 두께가 최대였다가 감소하는 경향을 나타내었다. 핵연료봉 내부 산화층은 핵연료봉 하부에서 상부에 걸쳐 거의 큰 변화 없이 얇게 형성된 반면 외부 산화층 두께는 핵연료봉 상부로 진행하면서 증가하는 경향을 나타내었다. 4주기 연소 핵연료봉 피복관 경도가 1주기 연소 핵연료봉 피복관 경도보다 약  $40\text{kg/mm}^2$  크게 나타났다. 1주기 연소 핵연료 grain size가 4주기 연소 핵연료 grain size 보다 대체로 컼으며 grain size fluctuation도 크게 나타났다. 핵연료봉 단면 중앙부, 중간부 및 가장자리 grain size 차는 크지 않았다.

#### 4. 결론

1. 4주기 연소 핵연료봉 산화층이 1주기 연소 핵연료봉 산화층보다 대체로 2배 정도 두껍게 형성되었으며 산화층은 핵연료봉 하부에서 얇게 형성되고 핵연료봉 상부로 진행함에 따라 증가하여 핵연료봉 하단 2500-3000mm 영역에서 산화층 두께가 최대였다가 감소하는 경향을 나타내었다.
2. 핵연료봉 내부 산화층은 핵연료봉 하부에서 상부에 걸쳐 거의 큰 변화 없이 얇게 형성된 반면 외부 산화층 두께는 핵연료봉 상부로 진행하면서 증가하는 경향을 나타내었다.
3. 4주기 연소 핵연료봉 피복관 경도가 1주기 연소 핵연료봉 피복관 경도보다 약  $40\text{kg/mm}^2$  크게 나타났다.
4. 1주기 연소 핵연료 grain size가 4주기 연소 핵연료 grain size 보다 대체로 컼으며 grain size fluctuation 도 크게 나타났다. 핵연료봉 단면 중앙부, 중간부 및 가장자리 grain size 차는 크지 않았다.

#### 감사의 글

본 연구가 과학기술부의 원자력사업의 일환으로 수행되었음

#### 참고문헌

- [1] P. Barbero, "Post-Irradiation Analysis of the Gundremmingen BWR Spent Fuel," EUR-6301(1978).

- [2] L. A. Neimark 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).
- [3] Ian J. Hastings et al., " Post-Irradiation Behavior of UO<sub>2</sub> Fuel II : Fragments at 175 to 275°C in Air," Nucl. Technol., 68, 40(1985).
- [4] Ian J. Hastings et al., " Post-Irradiation Behavior of Naturally and Artificially Defected UO<sub>2</sub> Fuel Elements at 250°C in Air," Nucl. Technol., 68, 418(1985).
- [5] J. B. Ainscough, B. W. Oldfield and J. O. Ware, " Isothermal Grain Growth Kinetics in Sintered UO<sub>2</sub> Pellets," J. Nucl. Mater., 49, 117(1973/74).
- [6] D. L. Douglass, " The Metallurgy of Zirconium," IAEA, p. 389(1971).

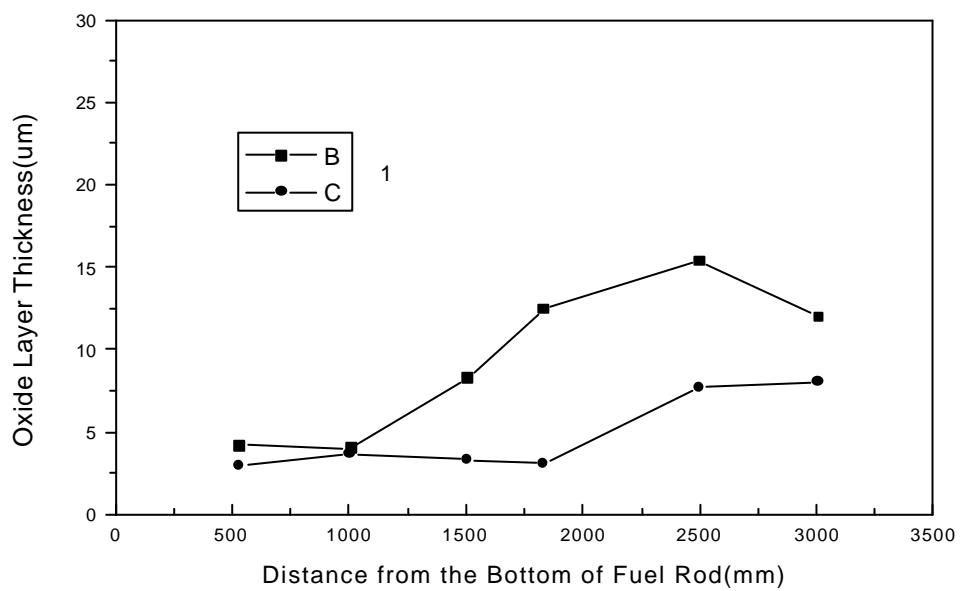


Fig. 1. Oxide Layer Thickness of 1 Cycle-Irradiated-Fuel Rod.

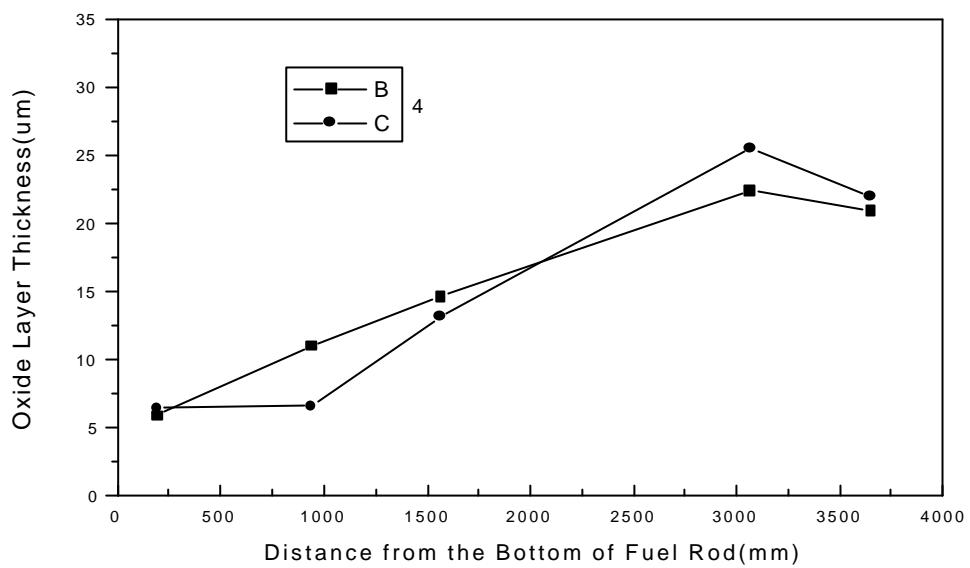


Fig. 2. Oxide Layer Thickness of 4 Cycle-Irradiated-Fuel Rod.

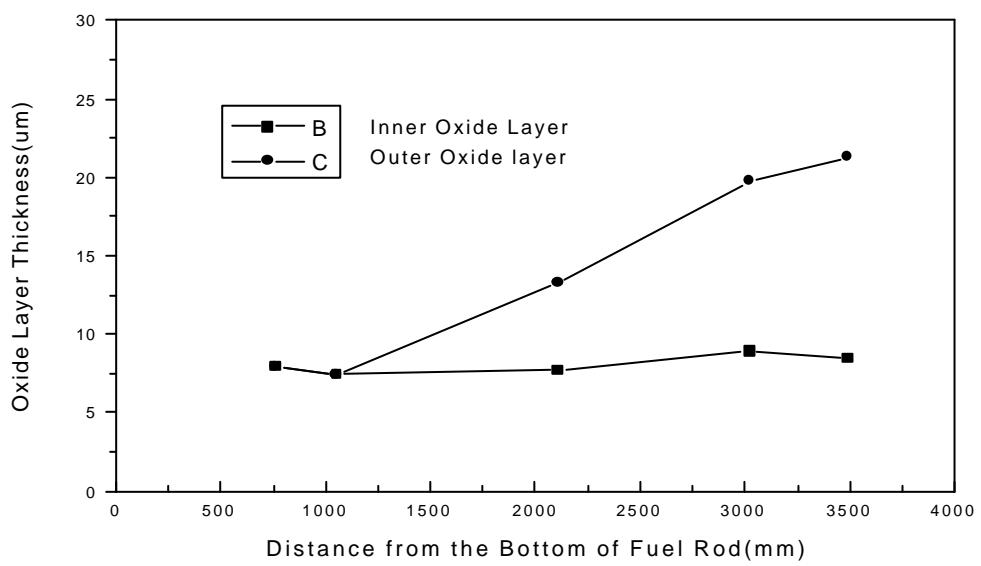


Fig. 3. Thickness of Inner and Outer Oxide Layer of  
4 Cycle-Irradiated-Fuel Rod,

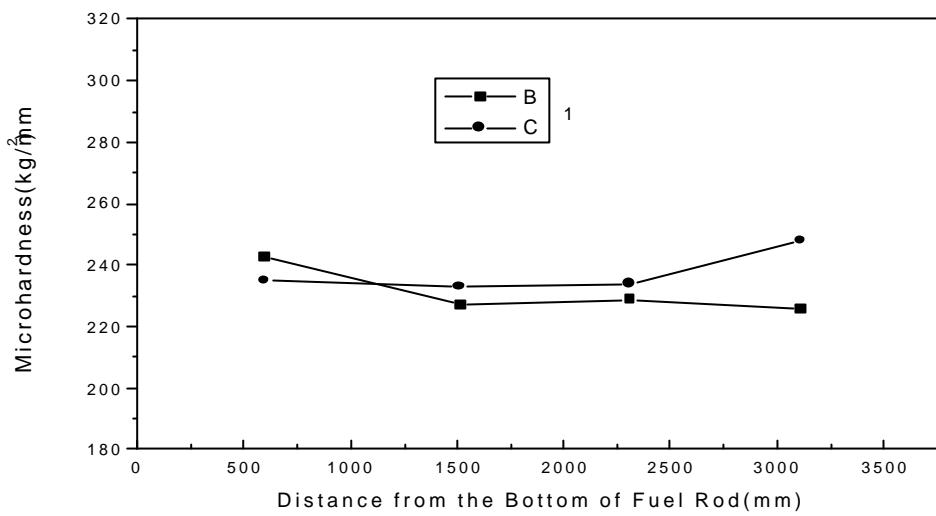


Fig. 4. Microhardness of 1 Cycle-Irradiated-Fuel Rod.

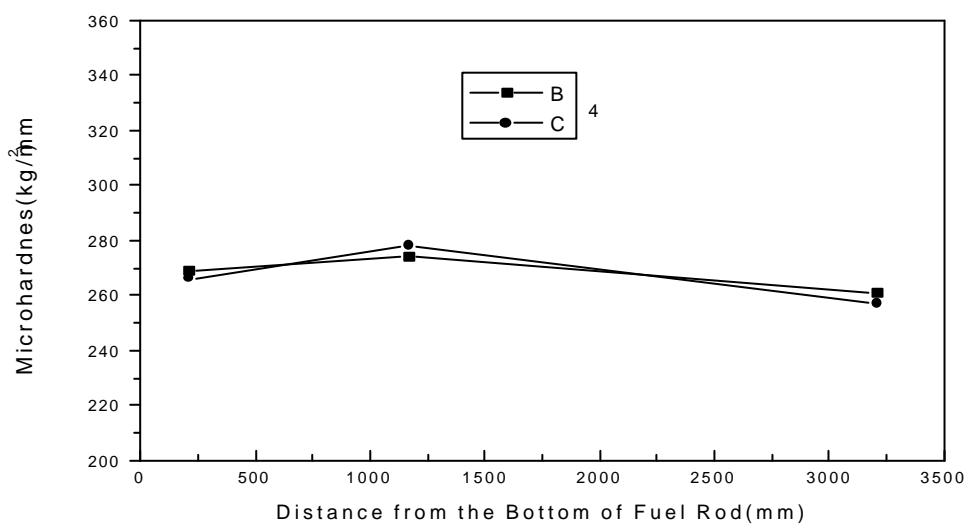


Fig. 5. Microhardness of 4 Cycle-Irradiated-Fuel Rod.

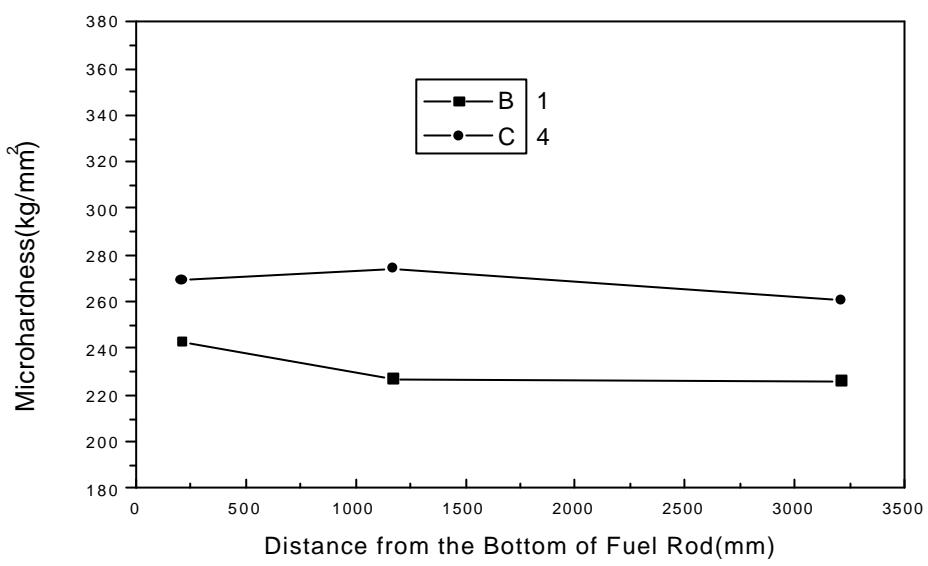


Fig. 6. Microhardness of 1 Cycle and 4 Cycle-Irradiated-Fuel Rod.

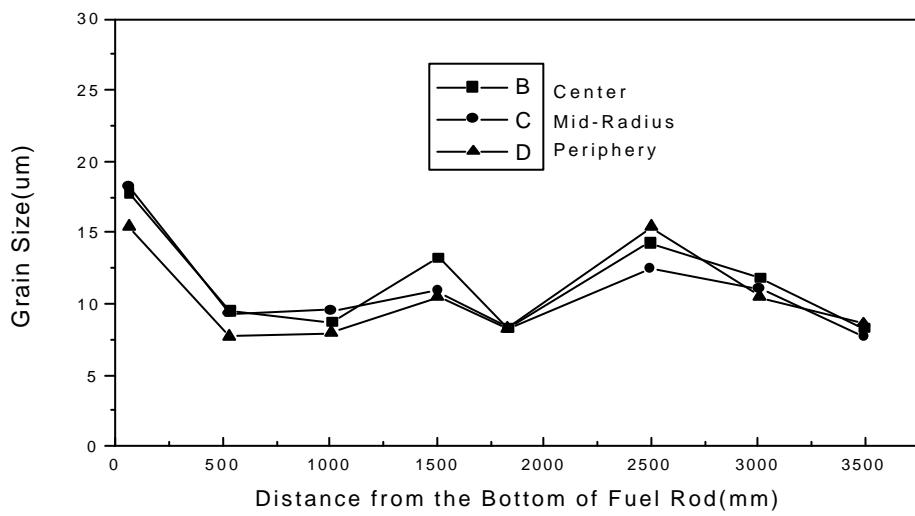


Fig. 7. Grain Size in each Location of Cross-Section of 1 Cycle-Irradiated-Fuel Rod.

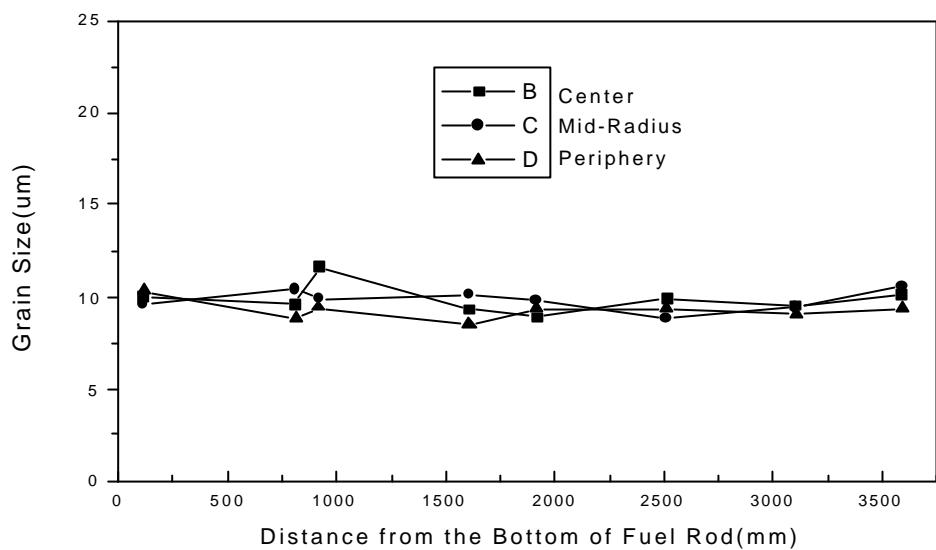


Fig. 8. Grain Size in each Location of Cross-Section of 4 Cycle-Irradiated-Fuel Rod.

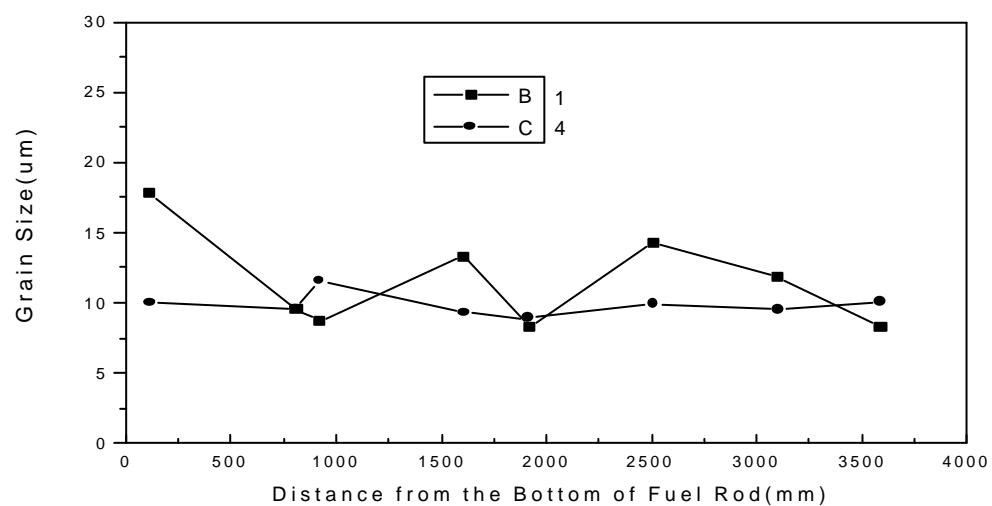


Fig. 9. Grain Size in Center of Cross-Section of 1 Cycle and 4 Cycle-Irradiated-Fuel Rod.

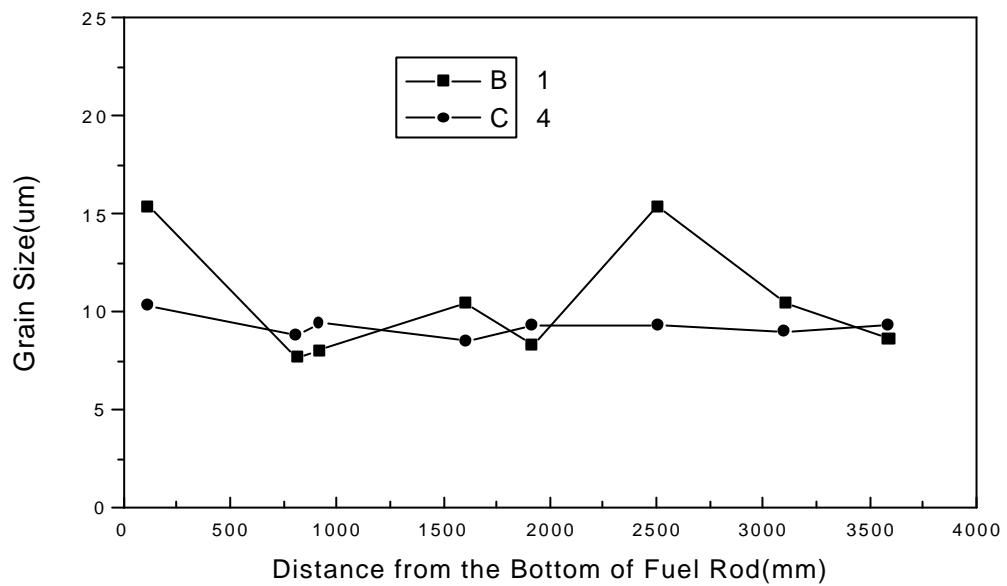


Fig. 10. Grain Size in Periphery of Cross-Section of 1 Cycle and 4 Cycle-Irradiated-Fuel Rod.