

PWR 고연소도 핵연료 소결체의 RIM 구조에 대한 전자현미경 분석

권형문, 김영민, 서항석, 민덕기, 전용범
한국원자력연구소

SEM of RIM structure from PWR rods with high burn-up

Kwon Hyoung Mun, Kim Young Min, Seo Hang Suk, Min Duck Kee, Chun Yong Bum
Korean Atomic Energy Research Institute

1. 서론

원자력 에너지원인 핵연료의 경제적인 이용을 위해 우리나라를 비롯한 각 국은 핵연료의 연소도를 지속적으로 증가시켜 왔다. 우리나라 가압경수로의 경우 80년대 붕평균 40 GWd/tU 연소도를 거쳐 현재 붕평균 60 GWd/tU 연소도까지 사용하고 있으며 이는 외국과 유사한 수준이라고 할 수 있다[1]. 이 논문은 고연소도 핵연료의 독특한 구조인 RIM 영역에 대한 전자현미경 분석을 바탕으로 RIM 구조의 특성을 설명하고 아울러 이에 따른 핵연료의 건전성을 평가하기 위한 논문이다.

현재, 우리나라 가압경수로 50 GWd/tU 이상 연소도의 핵연료를 한국원자력연구소 조사후 시험시설로 수송하여 고연소도 핵연료 안전성 시험의 일환으로 핵연료에 대한 비파괴 및 파괴시험이 수행되고 있으며, 파괴시험의 항목으로 소결체 반경반향의 기포 분포와 RIM 구조 특성을 평가하기 위한 전자현미경 분석이 수행되고 있다.

핵연료 건전성과 관련하여 고연소도 핵연료에서의 주요 관심 부분은 소결체의 RIM 영역이다. 열전달 계수, 밀도 변화, 기포 형성으로 인한 팽윤 및 기계적 특성에 주는 RIM의 영향을 평가하는 핵연료 성능 연구와 RIM 형성의 문턱값 및 RIM 영역의 성장 기구를 밝히는 연구 등이 세계 각국에서 활발하게 이루어지고 있다[2].

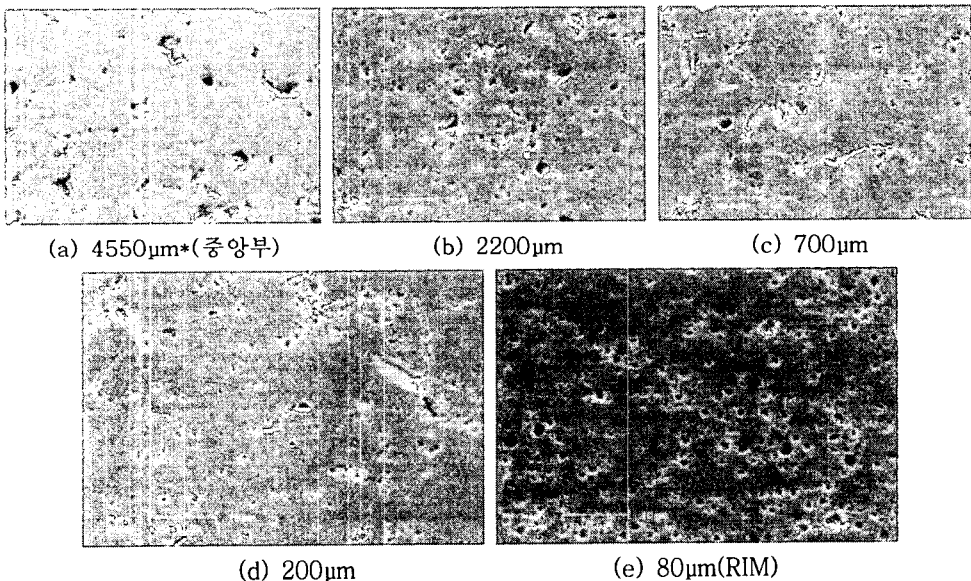
2. 이론

평균붕연소도 40 GWd/tU에서 발생한다고 보고되고 있는 RIM 영역은 중성자속이 높고 Pu의 누적으로 다른 영역에 비해 국부적인 연소도가 높은 핵연료 소결체 외곽 부분에서 발생하며 마이크로미터 이하 단위의 결정립, 1 μm 정도의 포어(pore)의 형성, 기공도의 증가, 결정립 내의 Xe 고갈 등의 특징을 보여준다[3].

상대적인 저온 영역인 RIM에서 핵분열생성 기체는 결정립이 세밀하게 쪼개져 기체 원소의 확산 거리가 짧아진 상태에서 결정립계로 대부분 빠져나온 것으로 보이지만 XRF(X-ray Fluorescence Spectrometer) 시험에 의하면 소결체 외부까지 연결된 경로를 따른 핵분열생성 기체의 방출은 매우 적으며 대부분의 핵분열생성 기체는 버블(bubble)의 형태로 포함하고 있는 것으로 보고되고 있다[4]. 이런 버블은 사고상황을 겪으면 고온에 의한 과도한 압력으로 소결체를 파열(burst)시키거나 크랙의 형성으로 인한 핵분열기체 방출의 잠재요소로서 역할을 할 수 있다. Spino[3]에 의하면 RIM 영역은 다른 영역에 비해 크랙 저항성이 좋은 것으로 나타났다. 따라서 이 결과에 따르면 붕내압의 증가를 가져오는 핵분열기체 방출 보다는 소결체/피복판 기계적 반응을 가져오는 소결체 팽윤에 더 영향을 주는 것으로 여겨지나, RIM의 핵연료 성능에 미치는 영향 평가는 아직 미진한 상태다.

3. 실험

국내의 원자력발전소에서 한국원자력연구소 조사후시험시설로 운반하여 파괴시험을 수행한 핵연료의 봉평균 연소도는 56.72 GWd/tU으로 전자현미경 시험을 수행한 위치의 소결체 평균연소도는 63 GWd/tU 이며, RIM 영역의 연소도는 85 GWd/tU에서 100 GWd/tU으로 추정된다. Philips XL40 전자현미경으로 조사후핵연료 시편 RIM 영역의 미세구조를 관찰하였다. 먼저 예칭하지 않은 소결체 시편을 2000배로 확대하여 반경 방향의 포어(pore) 분포형태를 평가하였다. 그림 1은 핵연료 시편의 반경방향별 포어 분포에 대한 전자현미경 시험 결과이다. 핵연료 중심부에서는 제조 당시 결정립의 크기인 7~8 μm 직경에 비해 20 μm 까지 성장한 결정립을 따라 포어가 존재하며, 피복관에서 2600 μm 지점부터 결정립 내에 포어가 형성된다. 1600 μm 지점에서는 다시 결정립 내의 포어가 줄어들고 결정립계 및 포어 표면에서 재결정(recrystallization)이 발생한다. 피복관에 접근할수록 다시 결정립내 포어가 형성이 되고 기공도가 높아지면서 결정립을 분간할 수 없는 조직을 보여주게 된다. 결정립내 포어가 소결체 반경방향 중간부분에서 조밀하게 나타났다가 사라지는 것은 조사과정에서의 온도 분포와 중성자속과 관련된 것으로 여겨지며 핵연료의 조사이력을 바탕으로 이에 대한 평가가 필요하다.



* 피복관으로부터의 거리

그림 1. 고연소도 핵연료 시편의 반경방향 포어 분포형태

광학현미경 및 전자현미경을 통하여 RIM의 두께를 측정하였다. 광학현미경에 의한 RIM의 정의는 결정립을 분간할 수 없는 영역[4]이고, 전자현미경에 의한 RIM의 정의는 시편제조 과정에서 polishing 되지 않은 면이 다량 관찰되는 영역[5]이다. Polishing에 사용되는 diamond paste의 결정립이 2 μm 이므로 그 보다 작은 결정립은 polishing되지 못하고 결정 조직이 그대로 드러나게 된다. 그림 2는 전자현미경으로 RIM 영역을 측정한 그림이고 그림 3은 광학현미경을 통해 RIM을 측정한 그림이다.

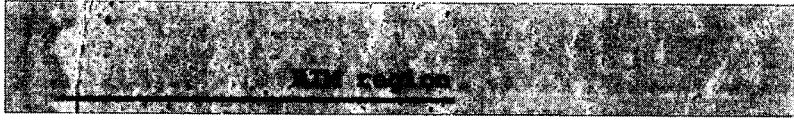


그림 2. RIM 두께 측정(전자현미경)

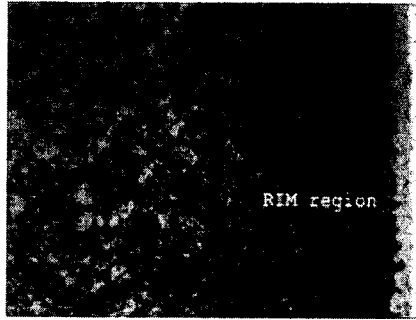


그림 3. RIM 두께 측정(광학현미경, 500배)

광학현미경의 의한 RIM 두께는 피복관에서 99 μm 지점이고, 전자현미경에 의한 두께는 그와 유사한 92 μm 로 측정되었다. PNL 시험자료에 의하면 소결체 평균연소도가 유사한 BK370 연료봉의 경우 광학현미경에 의한 RIM 두께가 100 μm 로 본 실험과 유사한 결과를 보여주며 EPMA에 의한 두께는 164 μm 로 상대적으로 큰 수치를 나타낸다[4].

RAPID 코드[6]를 사용하여 소결체 반경방향의 연소도 분포를 평가한 결과, 전자현미경에 의한 RIM의 국부적인 문턱 연소도는 86 GWd/tU 이었다. RIM의 국부 문턱 연소도값은 Barner의 경우 60 GWd/tU으로 평가하였고, Kameyama의 경우 70~80 GWd/tU으로 평가하였다. 이전 연구자에 비해 높은 문턱연소도값이 나타난 이유는 이전 연구자들이 EPMA에 의한 결정립 내의 Xe 고갈 평가를 통해 RIM 두께를 결정하는 방법이 더 낮은 연소도에서 먼저 발생하기 때문인 것으로 보이며, 또한 RIM 영역의 조사온도에 대한 영향도 고려되어야 할 것으로 보인다.

반경방향 연소도 분포값을 이용하여 Origen-S 코드[7]로 핵분열기체 생성량을 평가해 보면 소결체 전체에 대한 RIM 영역의 생성분율은 7.5% 정도이다. 그림 4는 피복관과 인접한 RIM 영역에서 크랙이 발생함을 보여준다. 소결체와 피복관이 화학적으로 단단히 결합한 상태에서 금속과 세라믹의 탄성계수 차이 때문에 발생한 응력이 취성이 큰 소결체 부분에 크랙을 발생하게 하는 주요 원인인 것으로 보이며 이 때문에 버블에 잡혀있던 핵분열기체가 연료봉의 플레넘(plenum) 영역으로 직접 방출될 것으로 여겨진다.



그림 4. RIM 영역에 발생한 크랙(광학현미경, 100배)

측정결과, RIM 영역의 원주방향 포어는 $1 \text{ n}/\mu\text{m}$ 로 분포한다. 거시조직사진을 통해 측정된 소결체의 직경 8.22mm 와 RIM에서의 평균 포어직경 $0.35\mu\text{m}$, 포어밀도 $2.2 \text{ n}/\mu\text{m}^2$ 을 적용하고 크랙이 RIM 전체에 걸쳐 단일선으로 발생했다고 가정하면 크랙에 의한 RIM영역 핵분열기체 생성량에 대한 핵분열기체 방출량은 0.5%이며, 전체 소결체에 대한 핵분열기체 방출량은 0.04%로 해당 연소도 핵연료의 핵분열기체 방출율인 5~10%[8]에 비해 그 영향은 매우 적은 것으로 여겨진다.

그림 5는 핵연료 소결체의 파단면을 전자현미경으로 관찰한 그림이다. RIM 영역의 subgrain 구조는 두 가지 형태로 존재하는데, 하나는 $0.5\mu\text{m}$ 정도의 다각형의 형태를 갖고 있는 subgrain과 200nm 정도의 포어 표면에서 원형(round)의 형태를 갖고 있는 subgrain이다.

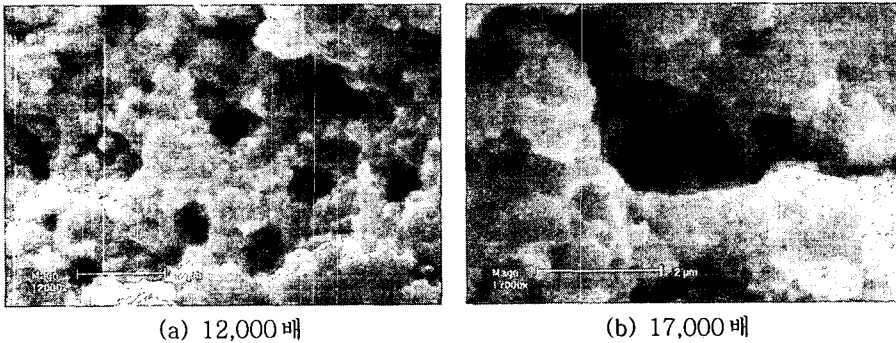


그림 5. 고연소도 핵연료 소결체 RIM 영역의 파단면(전자현미경)

4. 결론

전자현미경 시험에 의하면, 소결체 평균연소도 $63 \text{ GWd}/\text{tU}$ 인 핵연료 시편의 RIM 두께는 $92\mu\text{m}$ 이었다. 이에 해당되는 RIM 형성 문턱연소도는 $86 \text{ GWd}/\text{tU}$ 이며, 소결체 전체의 핵분열기체 생성량에 대한 RIM의 핵분열기체 생성분율은 7.5%이다. RIM에서 발생한 크랙으로 인한 핵분열기체 방출율은 0.04%로 소결체 전체 방출율에 비해 그 영향이 미미한 것으로 보인다. 하지만 여전히 RIM에서 형성되는 크랙에 대한 분포 양상 및 핵분열기체 방출율 기여도에 대한 실험자료는 부족하며 추가적인 실험이 필요하다. 특히 고연소도에 의한 RIM 두께의 평가와 크랙 형성기구의 규명을 통한 고연소 핵연료 안전성 검증이 요구된다.

고연소도 핵연료의 독특한 구조인 RIM에 대한 연구는 초기 형성 과정 및 미세구조적인 특징에 대한 연구가 주를 이루어왔다. 고연소도 핵연료의 안전성 평가를 위해서는 핵연료 성능과 관련된 추가적인 연구가 요구된다. RIM에서 발생한 크랙의 영향 및 RIM 영역의 hardness, fracture toughness 등의 기계적 특성, 열전도도에 대한 평가, 포어 생성으로 인한 소결체의 팽윤현상, 핵분열기체 방출 기여도를 비롯한 RIM 구조가 핵연료 성능인자에 미치는 영향에 관한 연구가 앞으로 더 수행되어야 할 것으로 여겨진다.

5. 참고문헌

- 1) 이찬복 등, “고연소도 핵연료 안전성 시험 및 평가기술 개발”, KAERI/RR-2314/2002, 한국원자력연구소 (2002)
- 2) Hj. Matzke, M. Kinoshita, "Polygonization and high burnup structure in nuclear fuels", J. Nucl. Mater. vol. 247, 108~115 (1997)

- 3) J. Spino et al., "Detailed characterisation of the rim microstructure in PWR fuels in the burn-up range 40-67 GWd/tM", J. Nucl. Mater. vol. 231, 179~190 (1996)
- 4) M.E. Cunningham et al., "Development and characteristics of the rim region in high burnup UO₂ fuel pellets", J. Nucl. Mater. vol. 188, 19~27 (1992)
- 5) N. Lozano et al., "High magnification SEM observations for two types of granularity in a high burnup PWR fuel rim", J. Nucl. Mater. vol. 257, 78~87 (1998)
- 6) 이찬복 외, "RAPID Program to Predict Radial Power and Burnup Distribution in UO₂ Fuel", KAERI/TR-1217/99, 한국원자력연구소 (1999)
- 7) O.W. Hermann et al., "ORIGEN-S: Scale System Module to Calculate Fuel Depletion, Actinide Transmutation, Fission Product Buildup and Decay, and Associated Radiation Source Terms", ORNL/NUREG/CSD-2/V2/R6 (1998)
- 8) R. Manzel, C.T. Walker, "EPMA and SEM of fuel samples from PWR rods with an average burn-up of around 100 MWd/kgHM", J. Nucl. Mater. vol. 301, 170-182 (2002)