

Non-Destructive Examination of 3 Cycle Burned 14×14 PWR Fuel

Key Soon Lee, Young Gil Lee, Duk Kee Min, Yoon Gyo Park,
Eun Pyo Lee, Sung Ho Eom and Seung Gy Ro

Korea Advanced Energy Research Institute

(Received March 31, 1989)

〈기술보고〉

三週期燃焼 14×14 PWR 核燃料의 핫셀 非破壞試驗

李基淳 · 李榮吉 · 閔德基 · 朴潤圭 · 李殷表 · 嚴成鎬 · 盧聖基

한국에너지연구소

(1989. 3. 21 접수)

Abstract

In order to investigate the in-reactor performance of the 14×14 PWR fuel burned for 3 cycles in power reactor, non-destructive examination was carried out in KAERI Hot Facility. The results obtained are as follows.

- 1) The surface of middle and bottom parts of the fuel rod was dark and the upper part was gray.
- 2) Severe defect such as through-hole was not found.
- 3) The diameter of rod was shrunked by about 0.65%, while the length was increased by about 0.55% compared with the design values.
- 4) The burnup was decreased by about 2% at the inconel grid region compared to other parts.

요 약

가압경수로에서 3주기간 연소한 14×14 사용후핵연료의 로내거동을 조사하기 위하여 핫셀에서 비파괴시험을 하였는데, 그 주요 결과는 다음과 같다.

- 1) 연료봉 외면은 중하부에서는 검은색 그리고 상부에서는 회백색이었다.
- 2) 피복관에 관통결함과 같은 큰 손상은 없었다.
- 3) 연료봉의 평균 직경수축율은 설계공칭치를 기준으로 약 0.65%, 그리고 길이의 평균성장율은 약 0.55% 이었다.
- 4) Inconel 지지격자 부위의 연소도는 다른 부위에 비하여 약 2% 감소하였다.

1. 서 론

핵연료의 원자로내 연소거동은 원자로의 안전성에 크게 영향을 미치는데, 이에 관한 시험자료는 照射後試驗을 통해서만 얻을 수 있다. 이에 따라 원자력 선진국에서는 오래전부터 핵연료의 연소거동에 많은 관심을 갖고 照射後試驗을 수행하여 연료의 改良을 거듭한 결과 1970년대초에는 핵연료의 파손율이 약 1%이었던 것이 현재는 약 0.01% 정도로 낮아졌다.

핵연료의 照射後試驗은 연료의 설계 및 개량, 연료설계의 신뢰성 평가, 연료의 안전성 평가, 그리고 손상연료의 원인 규명등에 필요한 연소거동자료등을 수집하기 위하여 수행되고 있는데, 본 연구에서는 14×14형 가압경수로 핵연료의 로내 신뢰성 평가에 필요한 연소거동 자료를 얻기 위한 목적으로 발전로에서 3週期동안 연소한 (~980 EFPD) 연료봉중에서 低燃燒된 R-2연료봉(평균연소도 ~29,000 MWD/MTU)과 高燃燒된 R-1, R-3, R-4연료봉등(평균연소도 ~34,000 MWD/MTU)등을 핫셀에서 비파괴시험하여, 그 결과를 분석 평가하였다.

2. 실험방법

연료봉의 핫셀 비파괴시험으로는 외표면의 巨視狀態를 관찰하기 위한 외관검사, 연료체의 내장상태를 관찰하기 위한 X-선 라디오그래피, 연료피복관의 결함을 探傷하기 위한 와전류시험, 연료봉의 燃燒度를 측정하기 위한 감마스캐닝, 그리고 연료봉 길이 및 직경변화를 측정하기 위한 칫수측정등을 수행하였다.

2.1 외관검사

외관검사는 다목적시험장치에 연료봉을 장전한 다음 연료봉을 상하로 이동시켜 가면서 內眼으로 직접 관찰한 후에 상세한 관찰이 필요한 부위는 periscope을 통하여 관찰하였다. 그리고 사진촬영이 필요한 부위에 대해서는 연료봉을 90° 간격으로 회전시켜 표면사진을 촬영하였다.

2.2 X-선 라디오그래피

X-선 라디오그래피는 주로 연료봉내 연료체의 내장상태를 관찰하기 위하여 수행되고 있는데, 연료봉과 필름을 동일한 속도로 이동시키는 방법으로 라디오그래피를 하였다. 라디오그래피 條件으로는 슬릿폭이 2mm, X-선관 전압이 350-400kV, 전류가 2.0-3.0mA 그리고 필름과 연료봉의 이동속도가 10-14mm/min 이었다.

2.3 와전류검사

와전류검사는 연료봉의 관통결함 및 연료피복관 내외면의 미세결함을 探傷하기 위하여 수행하였는데, 探傷子는 내경이 11.3mm인 差動型 環狀 코일(differential type encircling coil)을 사용하였으며 探傷周波數는 200kHz로, 그리고 探傷子가 움직이는 대신 연료봉이 이동하는 방법으로 결함을 조사하였다.

2.4 연소도 측정

연료봉의 연소도를 측정하기 위한 核種으로는 ^{95}Zr - ^{95}Nb , ^{106}Ru - ^{106}Rh , ^{140}Ba - ^{140}La , ^{144}Ce - ^{144}Pr 및 ^{137}Cs 등 여러 핵종이 있는데 [1-5], 가압경수로의 연료와 같이 장기간 연소한 경우에는 半減期가 긴 핵종을 연소도측정 핵종으로 사용해야 하므로, ^{137}Cs 을 연소도측정 핵종으로 선택하여 연소도를 측정하였다.

연료봉의 측방향 연소도 측정은 연료소결체의 간격을 구별할 수 있도록 폭이 0.5mm인 시준기 slit)를 사용하여 측방향으로 스캐닝(scanning)을 하였으며, 徑方向의 燃燒度分布를 조사하기 위한 미세감마스캐닝은 슬릿폭이 0.5mm×0.5mm이고, 길이가 80mm인 텅스텐 시준기를 사용하여 수행하였는데, 이때 試料의 이동간격은 0.3mm, 그리고 각 測定点의 감마선 검출시간은 600sec 로 하였다.

2.5 재원측정

연료봉의 재원측정은 직경과 길이에 대하여 수행하였다. 직경측정은 측정전에 標準棒으로 측정장치의 측정감촉자(senser)를 교정한 후 0°와 90°의 두 방향에서 1mm 간격으로 측정하여 자료를 수집한 후 100mm 마다 평균을 내었으며, 두방향

에서 측정된 직경의 차이가 심한 부위는 원주방향으로 1°간격으로 직경을 再測定하여 난형도(ovality)를 조사하였다. 그리고 길이측정은 측정감축자를 통과한 연료봉의 길이로서 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 외관변화

연료봉을 핫셀에서 상세히 관찰하여 본 결과 연료봉들이 모두 下部棒端으로부터 약 300cm 상부부위까지는 전반적으로 검은색을 나타내고 있었으며 그 윗 부분에서는 검은색과 회백색이 섞기면서 상위부로 올라갈수록 점점 회백색으로 바뀌었다. 이러한 색상변화는 피복관 외면의 酸化層 두께에 따라 생기는 현상으로 연료봉 上部로 갈수록 피복관의 酸化度가 증가하였다는 것을 알려주고 있다.

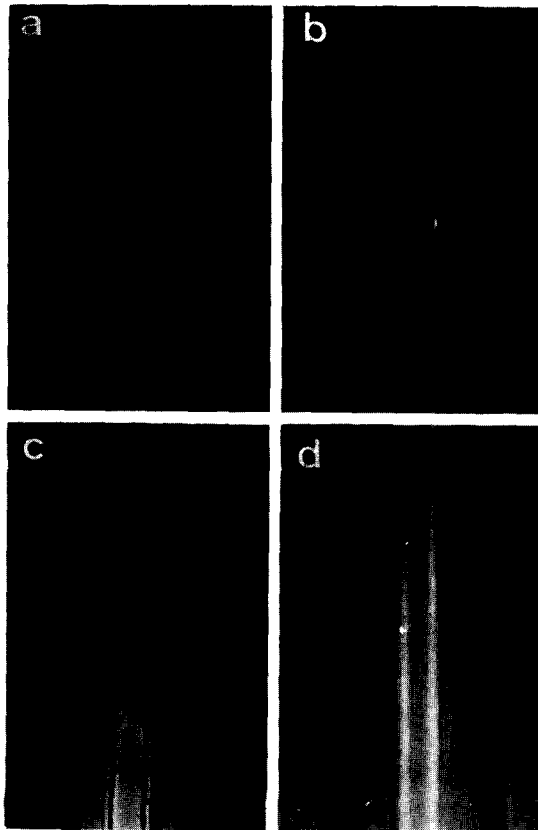


Figure 1. Outer Surface Photographs of R-1 Rod : 250mm(a), 1370mm(b), 3370mm(c) and 3680mm(d) from Bottom End Plug.

Figure 1은 고연소된 R-1연료봉의 여러위치에서 촬영한 외관사진인데 연료봉의 중간부위 및 아래부위에서는 검은색으로 변하고 상부에서는 회백색으로 변한 연료봉의 모양을 보여주고 있는데, 특별한 外部損傷은 발견되지 않았다. 다만 Figure 1(b)에서 보는바와 같이 지지격자(grid)가 위치했던 부위에서 지지격자의 스프링에 의해 생성된 것으로 보이는 작은 表面損傷이 있었다. 그런데 이와 같은 지지격자 부위의 損傷은 핫셀시험을 한 대부분의 다른 연료봉에서도 발견되었다.

3.2 연료봉 결함

연료봉의 결함유무를 와전류검사법으로 조사한 결과의 一例로서 R-4연료봉의 검사결과가 Figure 2에 있다. 그림에서 보는바와 같이 관통결함등 특별한 결함은 발견되지 않았고 다만 燃焼中에 연료의 中心부와 體端의 열팽창 차이로 인하여 피복관에 생긴 릿지(ridge) 현상만이 나타났다.

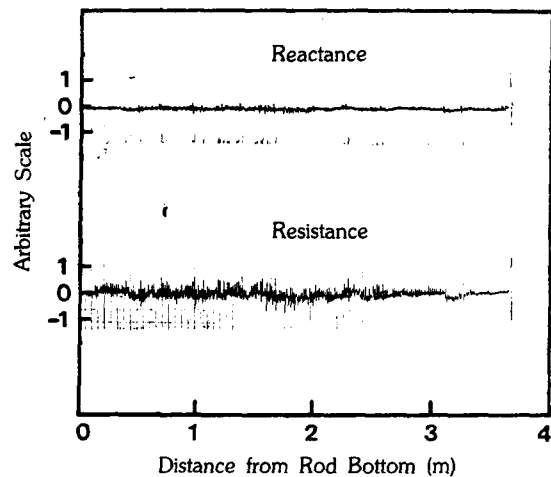


Figure 2. Eddy Current Signals of R-4 Rod.

3.3 연소도 분포

輕水爐에서 사용한 핵연료의 축방향 연소도분포는 중성자의 爐心內 축방향 분포와 밀접한 관계가 있는데, ¹³⁷Cs을 연소도측정 핵종으로 선정하여 축방향 감마스캐닝하여 얻은 R-1연료봉의 연소도분포가 Figure 3에 있다. 그림에서 보는바와 같이 모든 연료봉이 下部와 上部에서 연소도가 낮았고 그외의 부위에서는 고른 분포를 나타냈다. 그러나 持支格子가 위치한 부위에서는 Inconel 持

支格子의 열중성자 흡수에 의한 영향으로 다른 부위 보다 약간 낮았는데, 집합체내 연료봉의 위치에 관계없이 연소도 감소를 支持格子의 폭을 기준으로 하면 약 2%정도 낮은 것으로 나타났다.

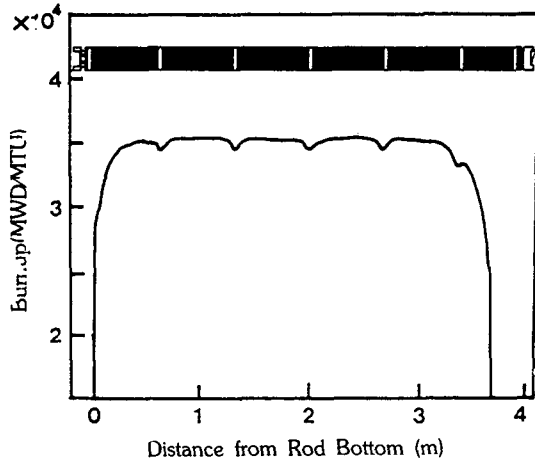


Figure 3. Axial Burnup Distribution of R-1 Rod.

감마선스캐닝으로는 연소도분포 측정외에도 연료봉내 燃料體의 내장상태도 추정할 수 있는데, Figure 4는 R-4연료봉 下部의 총감마선스캐닝 (gross gamma scanning) 결과의 일부로, 연료봉 하단에서 15 번째와 16 번째 연료소결체의 사이가 떨어져 있는 사실이 발견되었는데, X-선 라디오그래피로 검사하여 본 결과 연료소결체 사이의 간격은 약 0.8mm 있었다.

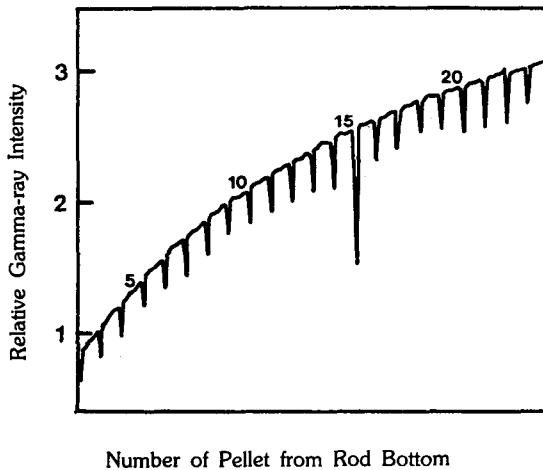


Figure 4. Axial Gamma Scanning on Lower Section of R-4 Rod.

3.4 徑方向 연소도 분포

¹³⁷Cs는 前述한 바와 같이 반감기가 길고 비교적 풍부한 핵분열생성핵종인 동시에 다른 핵분열생성물의 붕괴에 의해서는 생성되지 않으므로 使用後核燃料에서 연소도 측정핵종으로 사용하고 있다. 따라서 온도구배에 따른 연료내의 이동을 무시할 수 있다면 徑方向의 ¹³⁷Cs 감마선강도 분포는 바로 徑方向의 연소도구배를 의미하는데, 일반적으로 1200°C 이하의 온도에서는 ¹³⁷Cs의 이동은 무시할 수 있다[6]. 그런데 가압경수로 핵연료에서는 1200°C 부근에서 핵분열생성기체가 結晶粒界에 집적되어 조직에서 나타나는 環像이 관찰되지 않는 것으로[7] 보아 ¹³⁷Cs의 연료내 이동은 무시할 수 있다. 따라서 ¹³⁷Cs의 徑方向의 분포로부터 직접 연소도분포를 구할 수 있다.

연료의 徑方向 연소도분포는 연료집합체의 外側に 위치한 R-2 연료봉에서 연소도가 14,000 MWD/MTU인 부위와 집합체 내부에 위치한 R-3 연료봉에서 연소도가 30,000 MWD/MTU 및 36,000 MWD/MTU인 부위를 선정하여 조사하였는데, 그 결과가 Figure 5에 있다. 그림에서 보는 바와 같이 연료의 外柱部에서 연소도가 最大值를 나타내고 中心部로 갈수록 감소하였으며, 徑方向에 따른 ¹³⁷Cs 감마선강도의 勾配率이 연소도에 거의 영향을 받지 않았다. 이것으로 보아 가압경수로 연료에서는 연소도에 관계없이 경방향 연소율구배가 같다는 사실을 알았다.

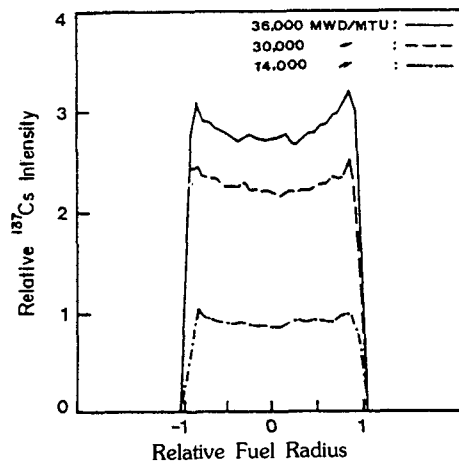


Figure 5. Radial ¹³⁷Cs Distribution in Fuel with Different Burnup.

3.5 치수변화

연료봉은 爐內에서 연료봉의 내외압 차이에 따라 피복관에 작용하는 응력에 의해 직경이 수축하는데, 低燃燒된 R-2 연료봉과 高燃燒된 R-1, R-3 및 R-4 연료봉의 직경변화가 Figure 6에 있다. 爐內 연소에 따른 연료봉의 직경 감소량을 연료봉의 설계공칭치와 비교하여 본 결과 스프링이 장전된 연료봉의 푸레늄(plenum) 부위에서는 직경의 변화가 거의 없는데 反하여, 연료부위의 평균직경은 10.65mm 내외로 감소하여 ~0.65%의 직경 수축이 있었다. 그리고 0°와 90°방향의 直徑差가 심하게 나타나는 부위, 즉 난형도(ovality)가 심한 부위를 1°간격으로 측정하여 본 결과 측정각도에 따른 직경의 差는 최대가 100μm로 연료봉 직경은 연소중에 거의 眞圓의으로 감소하였다.

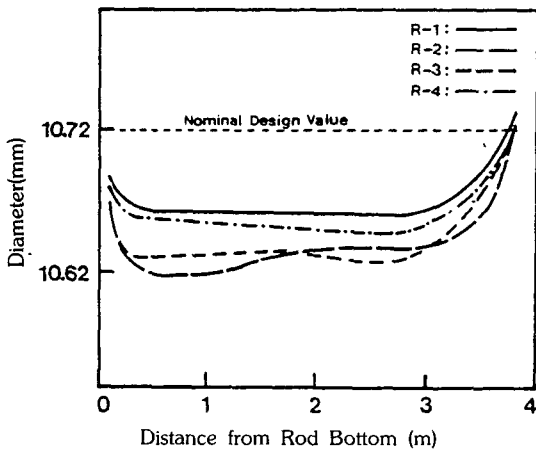


Figure 6. Diametral Variations of R-1, R-2, R-3 and R-4 Rod.

한편 爐內 연소중에 생기는 연료봉의 성장은 주로 PCMI(연료와 피복관의 기계적반응), creep-down 및 照射成長등에 의해 축방향으로 일어나는데, 연료봉의 성장이 심하게 일어나는 경우에는 지지격자 스프링의 압박에 의해 또는 상부(top) 및 하부노즐(bottom nozzle)에 의해 연료봉의 굽음변형이 일어나 연료의 손상에 큰 영향을 줄 수도 있어, 핵연료의 안전성에 대단히 중요하다.

PCMI에 의한 연료봉성장은 원자로의 선출력 상승에 따라 일어나는 연료의 팽창이 피복관의 팽창보다 더 크게 일어남으로 생기는데, 연료가 피복관내 偏心되어 있거나 또는 연료단면의 평활도 및

연료의 균열이 심한 경우에는 낮은 線出力變化에서도 일어나고 있다. PCMI는 燃燒初期에는 연료-피복관사이의 간격이 비교적 크므로 약하게 일어나는데 반하여, 연소가 진행됨에 따라 연료와 피복관 사이의 간격이 작아지면 강하게 일어난다. 그런데 PCMI에 의한 연료봉성장은 연료와 피복관의 기계적반응에 의해 일어나므로 연료와 피복관의 설계에 크게 영향을 받아 연료체의 길이가 짧을수록, 연료체의 dish가 클수록, 그리고 연료와 피복관 사이의 간격이 클수록 작게 일어난다.

Creep-down에 의한 연료봉성장은 온도에 의존하는 熱creep과 照射에 의존하는 照射creep으로 구분할 수 있는데, 熱creep은 연료봉의 内外壓의 차이에 의해 생기는 응력이 연료봉을 압축시킴으로 축방향으로 성장이 일어나는데, 연료와 피복관이 강하게 접촉할때까지 진행하고 그후에는 연소도 증가에 따른 연료의 팽창이 일어나므로 오히려 연료봉의 外徑이 증가하게 되어 高燃燒度에서는 축방향으로 연료봉의 수축이 일어난다. 한편 照射creep은 中性子 照射에 따른 硬化에도 불구하고 creep속도가 증가하는 현상으로, [8-11] 보통 다음과 같이 표시되고 있다. [12].

$$\epsilon = \text{const.} \times \sigma \times \phi$$

여기서, ϵ 는 creep率, σ 는 응력 그리고 ϕ 는 중성자 照射量인데, 熱creep이 온도에 강하게 의존하는데 반하여 照射 creep은 응력 및 중성자 照射量에 1次線形的으로 의존하며, 온도에는 영향을 받지 않는다. 따라서 照射creep은 온도가 낮은 경우에는 爐內成長에 특히 중요한 역할을 한다.

照射成長은 응력이 없는 상태에서도 中性子照射에 의해서만 연료봉성장이 일어나는 현상으로 [13-15], 照射에 의해 생성된 格子缺陷이 전위로 확산하여 들어가 생기는데, 照射量, 照射溫度, 냉간가공도, 열처리 및 집합조직등에 영향을 받는다[16-20]. 따라서 지르코늄과 같이 cph 결정구조를 갖는 금속에서는 照射成長이 c-軸으로는 수축하고 a-軸으로는 成長이 일어나므로 [21] 가압경수로 연료봉의 경우와 같이 피복관이 축방향으로 집합조직을 갖는 경우에 성장에 주요 역할을 한다.

가압경수로에서 3주기동안 연소한 R-1, R-2, R-3 및 R-4 연료봉의 길이를 측정된 결과가

Table 1에 있는데, 표에서 보는바와 같이 燃焼後 연료봉의 길이는 3878mm에서 3880mm 사이에 있었다.

Table 1. Growth of Fuel Rod Burned for 3 Cycles in PWR

	Before Irradiation ¹⁾	After Irradiation	Growing Ratio ($\Delta L/L$)
R-1 Rod	3,857mm	3,880mm	0.60%
R-2 Rod	3,857mm	3,878mm	0.54%
R-3 Rod	3,857mm	3,880mm	0.60%
R-4 Rod	3,857mm	3,879mm	0.57%

1) Design Nominal Value

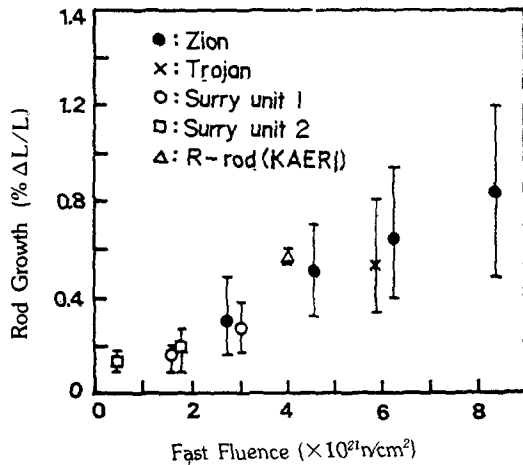


Figure 7. Comparison of Rod Axial Growth Strain vs Fast Neutron Fluence.

따라서 燃焼前의 연료봉 길이를 설계공칭치대로 3857mm로 본다면 연료봉은 燃焼後 21-23mm 길이가 늘어나 0.55-0.59%의 연료봉성장이 일어났는데, 가압경수로에서 3주기동안 연소될때 高速中性子($E \geq 1 \text{ MeV}$)의 照射量을 $4 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ 으로 본다면(가압경수로 로심의 평균 고속중성자속을 $5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2$ 으로 간주하여 계산), 이와같은 연료봉의 성장은 Figure 7에서 보는바와 같이 다른 시험결과에 [22] 비하여 약간 크다. 그러나 전술한 바와같이 연료봉의 성장에는 中性子 照射量과 피복관의 조직상태가 큰 영향을 미치므로 다른 使用後核燃料의 시험결과와의 정확한 비교는 어렵다.

4. 결 론

가압경수로에서 3주기동안 연소한 14×14 핵연료의 燃焼舉動을 조사하기 위하여 저연소된 R-2 연료봉(평균연소도 $\sim 29,000 \text{ MWD/MTU}$)과 고연소된 R-1, R-3 및 R-4 연료봉등(평균연소도 $\sim 34,000 \text{ MWD/MTU}$)을 핫셀에서 비파괴시험을 수행하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

- 1) 연료봉의 中下部는 전반적으로 黑色, 그리고 上部로 올라갈수록 산화층의 두께 증가에 따라 점점 灰白色으로 변화하였다.
- 2) 피복관에 관통결합등 큰 손상을 일어나지 않았다.
- 3) 연료봉의 직경 평균수축은 연료봉의 설계공칭치를 기준으로 $\sim 0.65\%$, 그리고 길이의 평균 성장율은 $\sim 0.55\%$ 이었다.
- 4) Inconel 支持格子 부위는 支持格子의 영향으로 연소도가 $\sim 2\%$ 감소하였다.
- 5) 연료의 徑方向 연소율분포는 연소도에 거의 영향을 받지 않았다.

참고문헌

1. R.J. Burian and J.E. Gates, "Post-irradiation Examination and Evaluation of an OMRE Fuel Assembly," BMI-1310(1959)
2. S.G. Forbes and W.E. Nyer, "Fuel Burnup Determinations by Gamma-Ray Scanning," IDO-16105(1953)
3. P. Barbero et al., "Post Irradiation Analysis of the Obrigheim PWR Spent Fuel," European Appl. Res. Rept. Nucl. Sci. Technol., 2, 129(1980)
4. R.S. Forsyth, W.H. Blackadder and N. Ronquist, "Burnup Determination by High Resolution Gamma Spectrometry: Axial and Diametral Scanning Experiments," Aktiebolaget Atomenergi Report, AE-267(1967)
5. S. Hiller, "Gamma-Spectrometric Burnup Determination in Reactor Fuel Rods", Kern Technik 12(10), 485(1970)
6. S.T. Huse, T.W. Crane, W.L. Talbert, Jr,

- J.C. Lee, "Nondestructive Assay Methods for Irradiated Nuclear Fuels", LA-6923(1978)
7. K.S. Lee, *KAERI Journal* 8(2), p 55(1988)
 8. R.A. Holt, *J. Nucl. Mater.* 90, 193(1980)
 9. S.R. MacEwen and V.Fidleris, *Phil. Mag.*, 31(1975), 1149
 10. C.H. Woo, *J. Nucl. Mater.*, 80, 132(1979)
 11. S.R. MacEwen and V. Fidleris, *ibid.*, 65, 250(1977)
 12. J.T.A. Roberts and F.E. Gelhaus, *ASTM STP-681*(1979)
 13. R.B. Adamson, *ASTM STP-633*(1977) p 326
 14. R.A. Murgatroyd and A. Rogerson, *J. Nucl. Mater.*, 79, 302(1979)
 15. R.B. Adamson, in: *Zirconium in the Nuclear Industry*, *ASTM STP 633*(1977), p 326
 16. E.F. Ibrahim and J.E. Winegar, *J. Nucl. Mater.*, 45, 335(1972/73)
 17. G.J.C. Carpenter and D.O. Northwood, *ibid.*, 56, 260(1975)
 18. D.O. Northwood, V. Fidleris, R.W. Gilbert and G.J.C. Carpenter, *ibid.*, 61, 189(1973)
 19. R.A. Holt, *ibid.*, 90, 193(1980)
 20. R.B. Adamson, *ASTM STP 633*(1977), p326
 21. A.J. Pedraza and D.Fainstein-Pedraza, *J. Nucl. Mater.*, 88, 236(1980)
 22. H.W. Wilson, E. Roberts, J.B. Melehan, R.S. Kaiser, J.D. Bein and H.Kunishi, "Fuel Performance Characteristics at Extended Burnup," in *ANS Topical Meeting on LWR Extended Burnup Fuel Performance and Utilization*, Apr, 1982, Williamsburg, Va, USA