

《Technical Report》

Destructive Examination of 3 Cycle Burned 14×14 PWR Fuel

**Key Soon Lee, Gil Soung You, Young Gil Lee,
Duk Kee Min and Hang Suk Seo**

Korea Atomic Energy Research Institute

(Received July 5, 1989)

三週期연소 14×14 PWR 핵연료의 핫셀 파괴시험

이기순 · 유길성 · 이영길 · 민덕기 · 서항석

한국에너지연구소

(1989. 7. 5 접수)

Abstract

Destructive examination of 14×14 PWR fuel burned for 3 cycles are carried out to investigate the in-reactor fuel performance. The results obtained are as follows;

- 1) Grain growth is not occurred at the fuel center.
- 2) Fuel density is decreased as the burnup increase, the density is down to 94.4% TD at burnup of 36,000 MWD/MTU.
- 3) Average thickness of oxide layer on cladding is less than 10 μm in the lower and middle section, while it is rapidly increased above 20 μm in the upper section.
- 4) The rate of hydride production in the cladding is large in the upper section than lower section and is related to the production of oxide on the cladding

요 약

핵연료의 로내 연소거동 분석평가 연구의 일환으로 가압경수로에서 3주기동안 연소한 14×14 사용후 핵연료를 핫셀에서 파괴시험하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

- 1) 고연소 부위의 연료중심에서도 핵연료의 결정립성장은 일어나지 않았다.
- 2) 연소도 증가에 따라 밀도감소가 일어나 36,000MWD/MTU 연소도에서는 연료의 밀도가 94.4%TD까지 감소하였다.
- 3) 피복관의 평균 산화층두께는 연료봉의 중간 및 하부부위에서는 10μm이하였으나 상부부위에서는 급격하게 20μm이상으로 증가되었다.
- 4) 피복관의 수소화물 생성량은 피복관의 산화물 생성량과 연동되어 연료봉 하부보다는 상부에서는 생성량이 많았다.

1. 서 론

원자로의 안전성 提高에 미치는 주요인자의 하나는 핵연료 및 연료피복관의 원자로내 연소거동인데, 이에 관한 자료는 照射後試驗을 통해서만 얻을 수 있다. 특히 발전로에서 사용한 핵연료는 재료시험로(material testing reactor)에서 照射시킨 핵연료에 비하여 핵연료의 건전성평가 및 설계개량에 필요한 실증적 자료를 얻을 수 있는 이점이 있다. 따라서 원자력선진국에서는 오래 전부터 발전로에서 사용한 핵연료의 연소거동에 깊은 관심을 갖고, 사용후핵연료봉의 비파괴 및 파괴시험 전반에 걸쳐 광범위한 照射後試驗이 수행되어 왔다.^{1, 3)}

사용후핵연료에 대한 조사후시험은 비파괴시험과 파괴시험으로 대별할 수 있는데, 본 연구에서는 가압경수로에서 사용한 14×14 핵연료의 건전성평가 연구의 일환으로, 발전로에서 3주기동안 연소한 연료봉 가운데 저연소된 R-1연료봉(평균연소도~28,000MWD/MTU)과 고연소된 R-2, R-3 및 R-4연료봉(평균연소도~34,000MWD/MTU)등을 핫셀에서 파괴시험하여 그 결과를 분석평가 하였다.

2. 실험방법

2.1 연료 조직검사

연료의 조직검사 시료는 연료봉의 비파괴시험결과와 핵연료 성능평가 전산코드로 예측한 연소거동 자료를 참조하여 결정한 시험부위를 미세절단기로 절단한후, 원격조종기로 조작할 수 있도록 개조하여 핫셀에 설치한 핫 푸레스로 마운팅을 하였다. 연삭은 그리드번호 240, 400 및 800의 SiC 연마지에서, 그리고 연마는 6 μ , 1 μ 의 다이아몬드 페이스트를 사용하였으며, 에칭은 1 part H₂SO₄-9 parts H₂O₂ 용액에서 110초간 침적방법으로 하였다. 조직관찰은 저배율현미경으로 전체부위를 관찰한 후 상세한 관찰이 요구되는 부위는 다시 금속현미경에서 400배로 관찰하였다.

2.2 연료 밀도측정

연소도가 높거나 또는 연료의 소결밀도가 낮은 경우가 아니면 연소에 따른 밀도변화량이 적어서

정밀하게 측정하지 않으면 정확한 밀도변화량을 구하기가 어렵다. 따라서 본 시험에서는 시료의 정확한 밀도를 구하기 위하여 침적용액속에 침적시킨 시료의 무게를 측정할 때에는 침적용기를 減壓器로 20mmHg이하로 排氣시켜 연소중에 연료에 생성된 초미세한 개기공(open pore)에도 침적용액이 침투하여 들어갈 수 있도록 한 후 시료의 무게를 측정하였다.

2.3 피복관 조직검사

피복관 조직검사는 주로 피복관 내외면의 산화층 및 피복관내 수소화물생성등을 관찰하기 위해 수행하였다. 조직검사시료를 연료의 경우와 같이 연료봉 비파괴시험 결과등을 분석하여 결정한 시험부위를 절단한 후, 핫 푸레스로 마운팅하여 그리드번호 240, 400 및 800의 SiC연마지에서 연삭을, 그리고 6 μ , 1 μ 의 다이아몬드 페이스트를 사용하여 연마를 하였다. 산화층은 연마한 상태 그대로 금속현미경에서 630배로 관찰하였으며, 수소화물은 1 Part HF-10 Parts HNO₃-50 parts H₂O₂-20 parts ethanol 용액에서 문지름방법으로 15초간 시료를 에칭한 후 역시 200배로 관찰하였다.

2.4 피복관 경도측정

연소중에 일어난 피복관의 照射誘導硬化를 측정하기 위하여 피복관 경도시험을 수행하였다. 경도 측정시료는 조직시험 시료와 같이 표면을 미세하게 연마한 후 Leichert-Jung금속현미경에 부착된 Vickers 경도계로 측정하였다. 측정하중은 30g, 그리고 荷重유지 시간은 15초이었으며 한 부위에서 6개의 경도를 측정하여 그중에서 최대치와 최소치를 제외한 나머지 4개의 硬度值를 평균하여 그 부위의 경도치로 하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 연료조직 변화

UO₂핵연료는 연소조건에 따라 균열생성, 소결기공(sintered pore)의 수축 및 소멸, 그리고 결정립성장등이 일어난다. 연료의 균열은 낮은 선출력(linear heat rate)에서도 자주 일어나는 현상으로 선출력이 낮은 경우에는 반경방향으로, 그리고 선출력이 높은 경우에는 원주방향으로도 균열이

발생한다. 한편 연료의 결정립성장에는 등축결정 성장(equiaxed grain growth)과 주상결정성장(columnar grain growth)이 있는데, 등축결정생장은 결정립계를 통한 원자의 확산에 의해 일어나는 현상으로 비록 최대선출력시의 온도이지만 연소온도의 측정척도로 이용되고 있다⁴⁾. 그리고 주상결정생장은 기공(pore)내의 UO_2 증발과 응고구에 의해 일어나는데⁵⁾, 가압경수로의 연소조건에서는 일어나지 않는다.

본 시험에는 연료봉의 고연소부위, 저연소부위, 그리고 냉각조건이 변하는 지지격자(grid)부위 및 그외에 상세한 조직시험이 요구되는 부위를 선정하여 조직시험을 수행하였는데, 연료의 반경방향 균열, 소결기공의 소멸 또는 감축등 낮은 선출력으로 연소시키는 경우에 나타나는 조직변화 현상은 없었다.

Figure 1은 시험부위중에서 연소도가 높았던 R-4연료봉 하단으로부터 269cm상부 횡단면의 거시 및 미세조직 사진으로, 이 부위의 연소도는 35,500MWD/MTU이었다. 그리고 平均線出力은 연료성능분석 전산코드로 예측한 연료봉의 선출력과 ^{137}Cs 의 측방향 감마스태닝결과를 종합하여 추

정하여 본 결과 제1연소주기에서 $\sim 210W/cm$, 제2연소주기에서 $\sim 260 W/cm$, 그리고 제3연소주기에서 $\sim 220W/cm$ 정도로 추정되고 있다. 연소에 따른 조직변화는 거시조직사진에서 보는바와 같이 균열은 주로 반경방향으로만 생성되었으며, Figure 1(A)의 미세조직사진에서 보는바와 같이 연료의 中心部에서는 일부 粗大한 결정립이 관찰되었다. 그런데 UO_2 핵연료에서는 결정립의 등축성장이 $1300^\circ C$ 부근에서 부터 일어난다고 보고되고 있는데⁶⁾ 反하여, 본 시료에서는 $1200^\circ C$ 부근에서 핵분열생성기체의 결정립계 집적으로 인한 기포(bubble)의 석출에 따라 나타나는 環像(porous annulus)이⁷⁾ 거시조직사진에서 보는바와 같이 나타나지 않았다. 이러한 사실로 보아 본 시료의 최고연소 온도는 $1200^\circ C$ 이하인 것을 알수 있으며, 따라서 연료中心部の 粗大한 결정립은 연소중에 일어난 것이 아니고 연료소결체 제조시에 생성된 것으로 보인다. 그리고 소결기공은 Figure 1의 (A) 및 (B)에서 보는바와 같이 연료의 中心部뿐만 아니라 中間部에서도 완전히 소멸되었는데 반하여, 外周部에서는 Figure 1(C)에서 보는바와 같이 그대로 남아있었다.

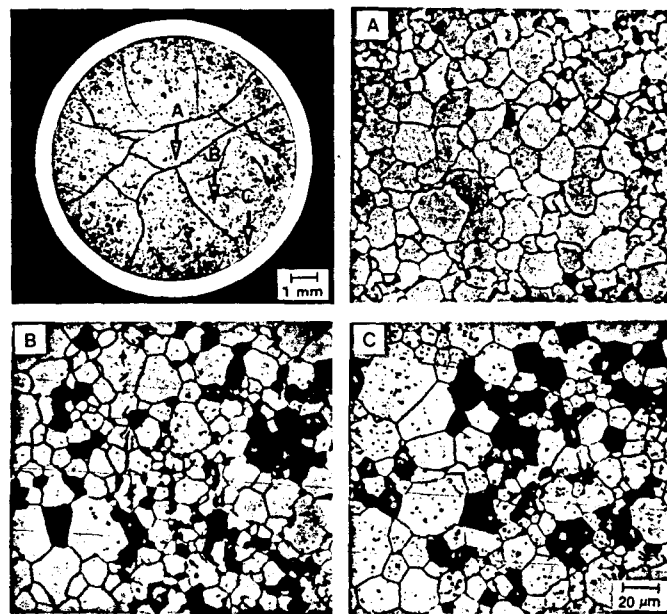


Fig. 1. Transverse Photographs at 269 cm from Bottom of R-4 Rod.

Figure 2는 R-4연료봉 하단으로 부터 25-26cm 상부 축단면의 거시 및 미세조직 사진으로, 이 부위의 연소도는 33,000MWD/MTU, 그리고 平均線出力은 제1연소주기에서 ~195W/cm, 제2연소주기에서 ~245W/cm 그리고 제3연소주기에서 ~200W/cm로 추정되고 있다. 조직시험결과에 의

하면 거시조직사진에서 보는바와 같이 균열은 횡방향뿐만아니라 축방향으로도 일부 생성되었으며, 연료내의 소결기공은 Figure 2의 (A), (B), (C)에서 보는바와 같이 中心部에서는 완전히 소멸되었으며, 中間部에서는 일부가, 그리고 外周部에서는 대부분이 소멸되지않고 그대로 잔유 하였다.

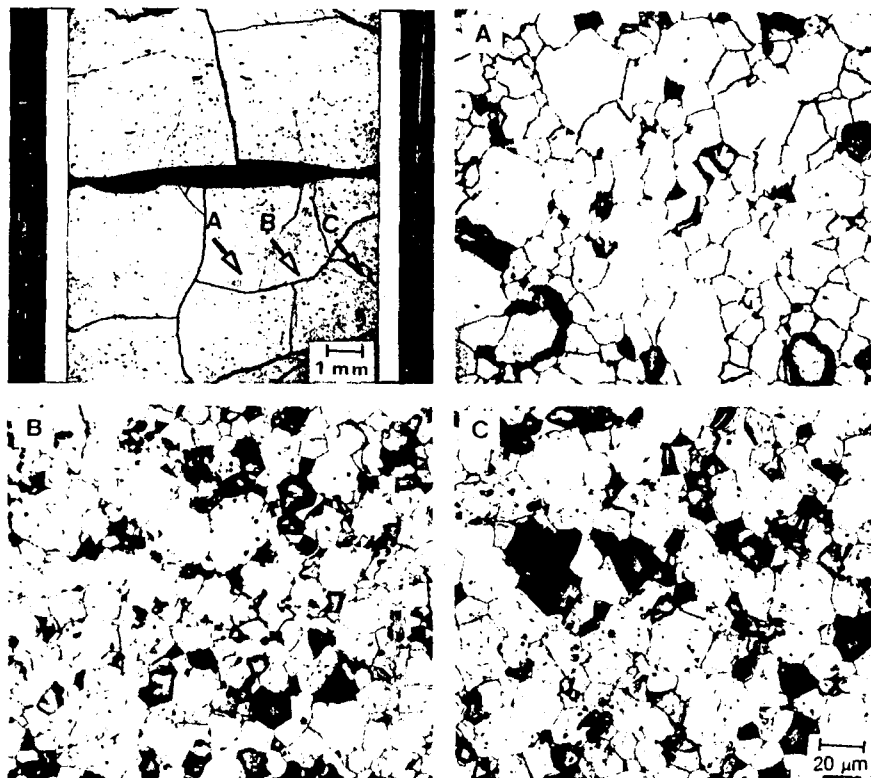


Fig. 2. Longitudinal Photographs at 25-26 from Bottom of R-4 Rod.

Figure 3은 연소도가 낮은 부위의 조직사진으로 R-3연료봉 하단으로 부터 2cm상부 횡단면의 거시 및 미세조직 사진이다. 이 부위의 연소도는 14,000MWD/MTU, 그리고 平均線出力은 제1연소주기에서 ~125W/cm, 제2연소주기에서 ~155W/cm, 제3연소주기에서는 ~130W/cm로 추정되고 있다. 이 부위는 다른 조직시험 부위에 비하여 선

출력이 상당히 낮은 관계로 연소에 따른 연료의 균열은 거시조직사진에서 보는바와 같이 거의 없었으며 소결기공도 Figure 3의 (A), (B), (C)에서 보는바와 같이 연료의 外周部와 中間部에서는 물론 中心部에서도 완전히 소멸되지 않고 그대로 잔유한 것으로 보아 中心部도 상당히 저온상태에서 연소된 것을 알 수 있다.

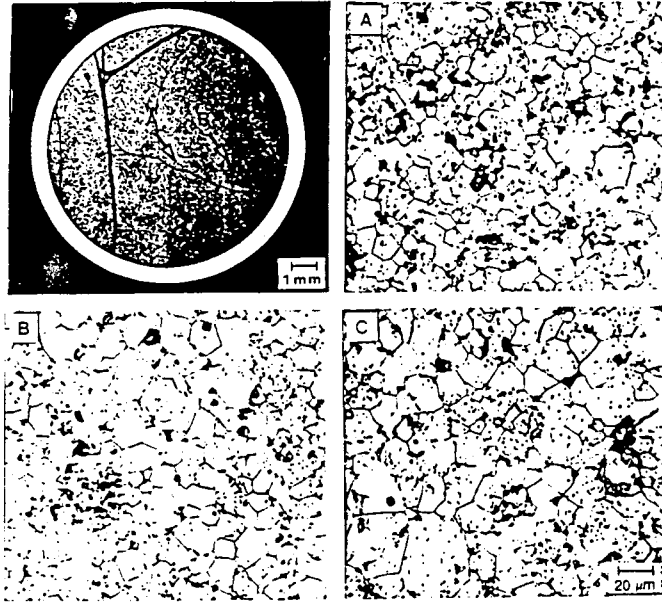


Fig. 3. Transverse Photographs at 2 cm from Bottom of R-3 Rod.

3.2 연료밀도 변화

연료내 소결기공은 연소중에 핵분열편(fission fragment)에 의해 일부 또는 전부가 孔空(vacancy)으로 분해되어 결정립계를 통하여 유출되므로, 熱的高密化현상과는 별개의 機構에^{8, 9)} 의해 연료의 체적감소, 즉 밀도증가를 야기시킨다. 이에 반하여 연소중에 생성되는 핵분열생성물은 핵분열된 母體보다 체적이 큼으로^{10, 11)}, 연소에 따라 연료의 체적을 증가시키는, 즉 연료의 밀도를 감소시키는 요인이 되고 있다. 따라서 핵연료를 원자로에서 연소시킬때 일어나는 체적변화(밀도변화)는 소결기공의 수축 및 소멸에 의한 체적감소와 핵분열생성물의 생성에 의한 체적증가의 차에 따라 체적변화가 일어난다.

연료의 로내 밀도변화에 관한 연구에 의하면 핵연료의 로내 최대고밀화는 5,000MWD/MTU부근의 저연소에서 일어난다고 보고되고 있는데¹²⁾, 본 시험의 경우에는 최저연소시료가 Figure 4에서 보는바와 같이 13,000MWD/MTU로, 그 이하로 저연소된 시료의 밀도측정 결과가 없어서 어느 연소도에서 최대고밀화가 일어나는지는 알수가 없다. 다만 측정시료중에서 최저연소도인 13,000 MWD/MTU에서 연료의 밀도가 95.0%TD로 最高值를 나타내다가 그후부터는 연소도증가에 따라 밀도가 감소하기 시작하여 시료중에서 최고연소도

인 35,500MWD/MTU에서는 94.4%TD까지 밀도가 감소하였다. 이와같은 시험결과는 외국의 동력로연료의 조사후실험 결과와¹²⁾ 비슷한 양상이지만 밀도변화에 있어서 차이가 있는데, 이러한 차이는 연료의 소결밀도, 소결기공의 크기 및 분포, 그리고 결정립크기 차이등에 기인하는 것으로 보인다.

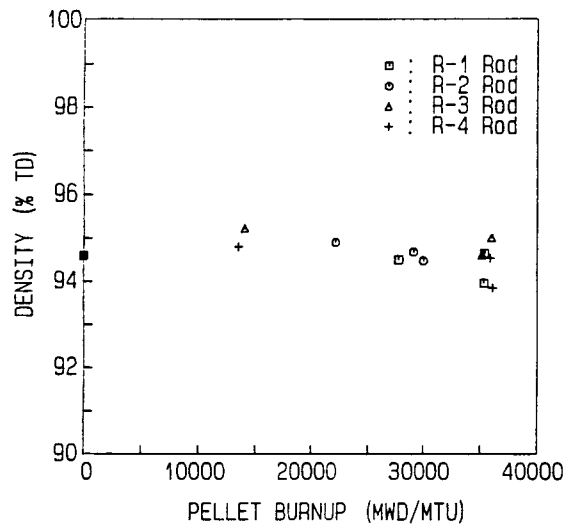


Fig. 4. Burnup Dependence of Fuel Density.

3.3 피복관 산화

연료피복관의 산화층은 지르칼로이 보다 열전도도가 낮을뿐만 아니라 산화층내의 균열이 원주방향으로 생성될 경우에는 열전달을 크게 감소시킨다. 따라서 피복관에 두꺼운 산화층이 생성되면 연료봉의 온도가 국부적으로 높아질 위험성이 있는 동시에 산화층의 연성부족으로 적은 응력에 의해서도 파손될 위험성이 크므로 연료봉의 안정성에 큰 영향을 준다.

지르칼로이 피복관의 외면에 생성된 산화층의 두께를 원주방향으로 60°간격씩 측정하여 평균값을 축방향의 위치에 따라 표시한 결과가 Figure 5에 있다. Figure 5에서 보는바와 같이 연료봉의 중간 및 하부 부위에서는 산화층의 평균두께가 10 μm이하, 그리고 상부에서는 산화층의 두께가 급격하게 20μm이상으로 증가하였으나, 푸레늄(plenum)부위에서는 또다시 15μm 이하로 감소하였다. Figure 6에 R-4연료봉의 여러 위치에서 생성된 산화층의 사진이 있다.

한편 연료피복관의 산화상태는 축방향 뿐만 아니라 원주방향으로도 산화조건에 국부적인 변화에 의해 산화층의 두께에 큰 차이가 있는데, 그 일례로 R-3연료봉의 여러위치에서 원주방향에 따라 측정된 결과가 Figure 7에 있다.

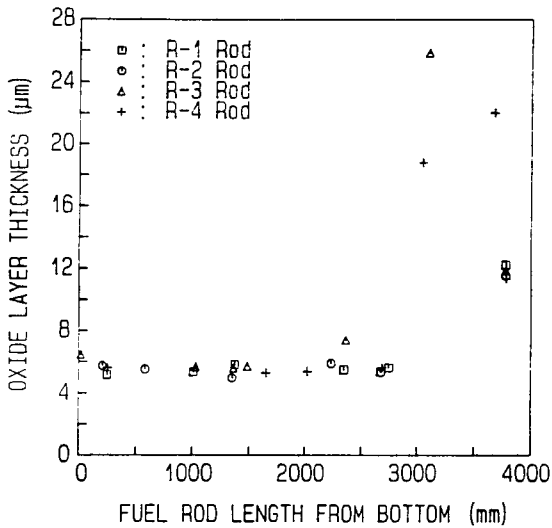


Fig. 5. Axial Distribution of Oxide Layer Thickness of R-1, R-2, R-3 and R-4 Rod.

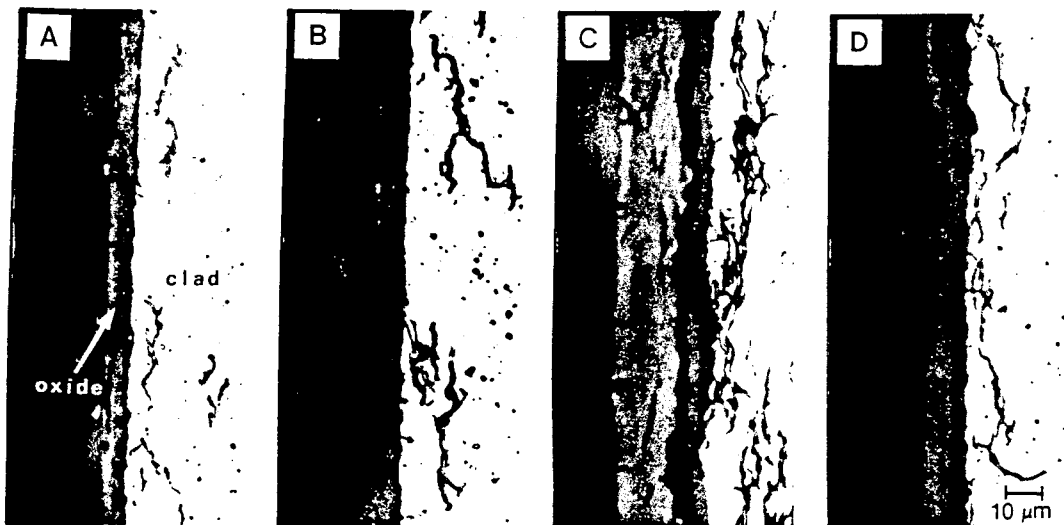


Fig. 6. Oxide Layer Morphology at 25 cm (A), 202 cm (B), 305 cm (C) and 378 cm (D) from Bottom of R-4 Rod.

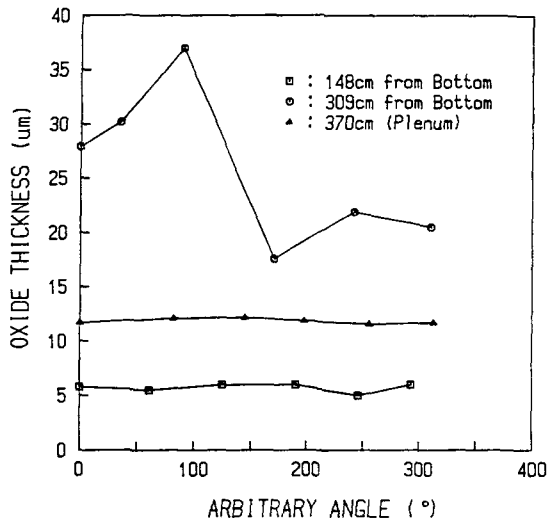


Fig. 7. Circumferential Distribution of Oxide Layer Thickness of R-3 Rod.

3.4 피복관 수소화

연료피복관의 수소화는 주로 피복관의 산화시에 발생한 수소의 흡수에 의해 일어나는데 수소화물이 생성되면 그 부위에 應力場을 형성할뿐 아니라 수소화물 자체도 취성 (embrittlement)이 강하므로 다량 생성하게 되면 적은 응력으로도 연료봉이 파손될 수 있다. 피복관의 산화시에 발생한 수소의 피복관내 흡수율은 산화층이 1-2 μm 정도로 작은 低酸化의 경우에는 발생수소의 80% 정도를 흡수하는데 반하여, 산화가 증가되어 산화층이 100 μm 이상으로 증가하면 발생수소의 흡수율이 12% 정도로 낮아지는데, 발전로의 핵연료에서는 연소 중에 발생된 수소의 약 10-20% 정도 흡수하는 것으로 알려져 있다.

연료피복관의 수소화거동은 피복관의 산화시에 발생하는 수소의 량과 밀접한 관계가 있는데, 시험결과와 일례로서 R-1연료봉의 수소화상태가 Figure 8에 있다. 그림에서 보는바와 같이 연료봉 하부에서는 수소화물의 생성량도 적었고 방향성이 없는데 비하여 상부에서는 생성량이 많아지면서 원주방향으로 생성되었다.

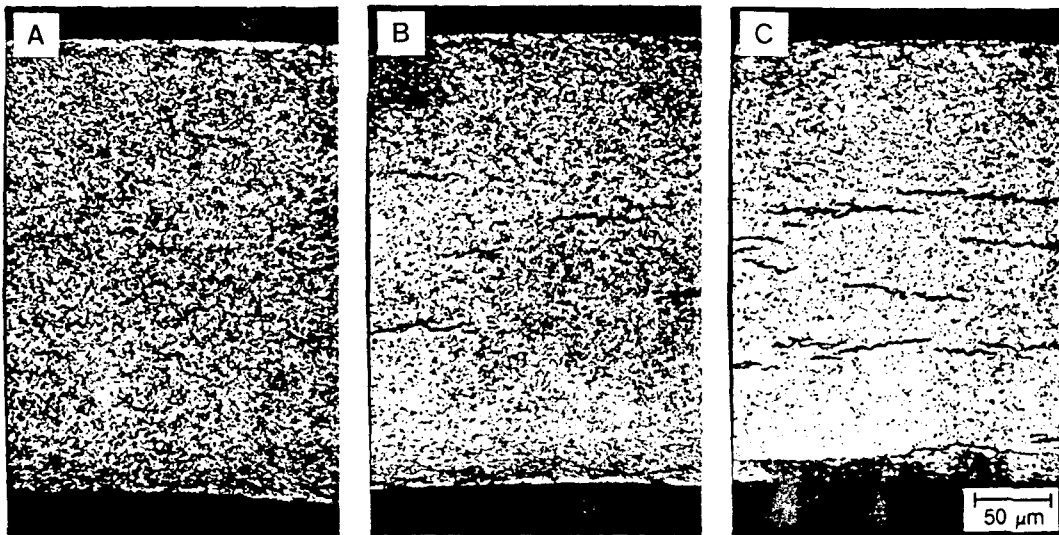


Fig. 8. Hydride Morphology at 137 cm (A), 234 cm (B) and 378 cm (C) from Bottom of R-1 Rod.

3.5 피복관 照射硬化

금속재료에 중성자가 照射되면 전위, black spot 등 결함집합체와 전위 loop, 그리고 보이드(void) 등 照射損傷을 만들어⁽¹³⁻¹⁵⁾, 이것들에 의해 照射硬化가 일어난다⁽¹⁵⁾. 그러나 지르칼로이 합금의 경우에는 경수로와 같은 照射條件에서는 보이드를 생성하지 않으므로^(16, 19), 조사정확는 주로 照射에 의해 생성된 전위와 loop 등 결함집합체에 의해서만 일어난다고 볼 수 있다.

가압경수로에서 3주기동안 연소되어 중성자 조사량이 $4 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ($E \geq 1 \text{ Mev}$) 정도로 추정되고 있는(로심의 평균 고속중성자속을 $5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{-sec}$ 로 간주하여 계산) R-2 및 R-4연료봉의 여러 위치에서 측정된 피복관의 경도가 Figure 9에 있다. 그림에서 보는바와 같이 연료봉에 따라 또는 연료봉의 축방향 위치에 따라 피복관의 경도에 큰 차이는 없었다. 이는 피복관의 재질특성 및 열처리조건이 동일하고, 그리고 조사온도와 중성자의 에너지분포 및 조사량에도 큰 차이가 없기 때문이다.

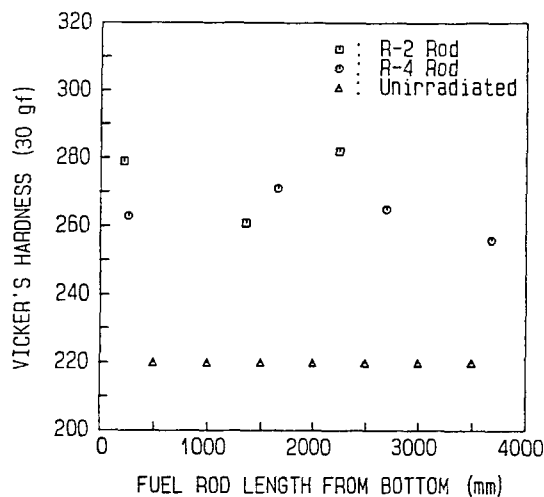


Fig. 9. Vicker's Hardness of Cladding Tube of R-2 and R-4 Rod.

제조가공후 재결정열처리를 하지않고 단순히 응력제거열처리만 시킨 질르칼로이 연료피복관은 제조가공시에 생긴 응력의 일부가 잔유응력으로 남아있다. 따라서 경수로에서 3주기동안 연소중에

피복관에 남아있던 잔유응력의 일부가 제거되지만 정상가동중의 피복관 온도를 고려해 보면 피복관의 軟化에 미치는 영향은 무시할수 있을 것이다. 따라서 가압경수로에서 3주기동안 연소한 연료피복관은 연소중에 약 50Hv정도 照射硬化가 일어난 것으로 보인다.

4. 결 론

핵연료의 원자로내 연소거동 평가연구의 일환으로 가압경수로에서 3주기동안 연소한 14x14형 핵연료봉을 핫셀에서 파괴시험을 수행하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

- 1) 연료의 균열은 주로 반경방향으로만 생성되었고, 최고연소부위의 중심에서도 결정립의 성장은 일어나지 않았다.
- 2) 소결기공은 연료의 중심부 및 중간부에서는 대부분 소멸되었으나 외주부에서는 연소도에 관계없이 그대로 잔유하였다.
- 3) 연소도가 증가할수록 밀도감소가 일어나, 36,000MWD/MTU연소도에서는 연료의 밀도가 94.4%TD로 감소되었다.
- 4) 피복관의 산화층은 연료봉의 중간 및 하부에서는 10 μm 이하였으나 상부에서는 급격하게 20 μm 이상으로 증가되었다.
- 5) 피복관내 수소화물은 연료봉 중하부에서 생성량이 적은데 반하여 상부에서는 생성량이 증가하면서 생성방향도 원주방향으로 일정하였다.
- 6) 연료피복관은 Vickers 경도로 약 50Hv의 조사정확가 일어났다.

References

1. ANS Topical Meet's on LWR Extended High Burnup Fuel Performance and Utilization, Williamsberg, Va, USA, Apr (1982).
2. The IAEA Specialists' Meeting on Post Irradiation Examination and Experience, The 2nd Meet'g on Examination of Fuel Assembly for LWR, Tokyo, Japan, Nov (1984).

3. ANS/ENC Topical Meet'g on the Reactor Safety Aspects of Fuel Behavior, Sun Valley, Idaho, USA, Aug (1981).
4. 이기순, 이병휘, 한국원자력학회지, 18, 347(1986).
5. J.R. MacEwan and V.B. Lawson, J. Amer. Ceram. Soc., 45, 42 (1962).
6. J.B. Ainscough, B.W. Oldfield and J.O.Ware, J. Nucl. Mater., 49, 117 (1973/74).
7. R. Manzel, F. Sontheimer and H. Stehle, "Fission Gas Release of PWR Fuel Under Steady And Transient Conditions Up To High Burnup" ANS Topical Meet'g on LWR Fuel Performance, Vol.2, p.4-33, Orlando, Fla, USA, Apr (1985).
8. H. Stehle and H. Assmann, J. Nucl. Mater., 61, 326 (1976).
9. M.O. Marlowe, Trans. ANS, 17, 166 (1974).
10. F.A. Nichols, WAPD-TM-570 (1966).
11. F. Anselin, The Role of Fission Products in the Swelling of Irradiated UO_2 and $(U, Pu)O_2$ Fuel, GEAP-5583 (1969).
12. T.A. Colman, G.M. Bain, T.D. Pyecha, J.S. Tulenko, R.G. Snipes and J.D. Kortheuer, "Extended Burnup Fuel Performance", in Ref. 1, p 1.
13. V.K. Sikka and J. Moteff, J. Nucl. Mater., 54, 325 (1974).
14. F.W. Wiffen, AIME Nucl. Metall., 18, 176 (1973).
15. J.D. Elen, G. Hamburg and A. Mastenbroek, J. Nucl. Mater., 39, 194 (1971).
16. R.W. Gilbert, K. Farrell and C.E. Coleman, *ibid.*, 84, 137 (1979).
17. A.W. Wolfenden and K. Farrell, Scripta met., 6, 127 (1972).
18. D.O. Northwood, R.W. Gilbert, P.M. Kelly, P.K. Madden, D. Faulkner and R.B. Adamson, J. Nucl. Mater., 79, 379 (1979).
19. A. Jostons, P.M. Kelly and R.G. Blake, *ibid.*, 66, 236 (1977).