

울진 2호기 K23-M04 연료봉 소결체의 미세구조
Microstructure of the Pellet of the K23-M04 Fuel Rod Discharged from
Ulchin 2 Nuclear Power Plant

김영민, 서항석, 권형문, 이찬복, 양용식, 김대호, 김선기, 전용범

한국원자력연구소
305-353 대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

울진 2호기에서 방출된 K23-M04 연료봉의 소결체 시편으로 부터 광학현미경 및 주사전자현미경을 이용하여 밀도, 기공, 결정립, rim 구조를 측정·분석하였다. 시편은 연소도가 64 및 66 GWd/MTU인 연료봉 위치에서 절단하여 제조하였다. 연소도 64 및 66 GWd/MTU에서의 밀도는 각각 93.7 및 92.9%, 기공의 크기는 각각 1.3 및 1.4 μm , 결정립의 크기는 각각 8.59~10.47, 8.95~12.66 μm 이다. 연소도 66 GWd/MTU에서 소결체의 반경 2.4 mm 안쪽에 기포가 밀집되어 있었고, 소결체 표면에서 중심 방향으로 88~180 μm 구간에 걸쳐 rim이 형성되었다. Rim 및 소결체 내부의 기포분포변화가 64~66 GWd/MTU 사이의 연소도에서 형성된다고 추정되었다.

Abstract

The study measured the microstructure of the UO_2 pellets of the K23-M04 fuel rod discharged from Ulchin 2 reactor using an optical and a scanning electron microscopy. The pellet specimens were extracted at the local burnup of 64 and 66 GWd/MTU. The pellet density, the pore distribution, the shape factor, the grain size, and the rim structure were measured and analyzed. The analysis results showed the density of 93.7 and 92.9 %, the pore size of 1.3 and 1.4 μm , and the grain size of 8.59~10.47 and 8.95~12.66 μm . The bubble concentration within the pellet region below radius of 2.4 mm and the rim structure appeared at 66 GWd/MTU.

1. 서 론

세계적인 현안인 고연소도 핵연료의 성능검증을 위한 연구가 국내에서도 활발히 진행되고 있다[1]. 고연소도 핵연료의 성능검증 방법의 하나인 조사후시험을 위하여 울진 2호기 K23-M04 연료가 선정되었다. 이 연료는 울진 2호기에 8주기에 장전되어 3주기 연소된 국내 최대 연소도 핵연료 집합체이며, 평균집합체 설계연소도 및 최대 봉 평균 설계연소도가 각

각 52,591 및 57,850 MWd/MTU이다. 2002년도에 울진 2호기에서 한국원자력연구소로 이송되어, 핵연료집합체의 외관검사, 연소도 분포측정 등 예비 조사후시험이 수행되었다. 현재는 핵연료 파괴검사, 소결체 가열시험, 피복관 기계시험 등 본격적인 조사후시험이 진행되고 있다.

본 연구에서는 조사후시험의 한 분야로서 울진 2호기 K23-M04 연료봉을 절단하여 만든 미세구조 측정용 시편을 통하여, 밀도, 기공, 결정립, rim 구조를 측정하고 분석하였다.

2. 미세조직 측정

소결체의 미세구조 분석을 위하여 밀도, 광학현미경 및 주사전자현미경 시편을 제조하였다. K23-M04 핵연료봉의 길이 방향으로 네 군데를 절단하여 시편을 채취하였다. 채취된 시편은 K23-M04-1, K23-M04-2, K23-M04-3 및 K23-M04-4로 명명되었다. 광학현미경 시편은 8개(디스크 모양 4개 및 축 방향 절단 시편 4개), 주사전자현미경 시편은 4개가 각각 제작되었다. 표 1에 시편 K23-M04-1~4의 핵연료봉 절단 위치와 local burnup을 나타내었다.

밀도는 수침법(immersion method)을 이용하여 측정하였다. 광학현미경 시편은 resin mounting, polishing, cleaning을 하여 광학현미경(Reichert-Jung Telatom II)으로 시편표면의 기공 사진을 촬영하였다. 이 후 grinding 및 etching을 하여 시편표면의 결정립 사진을 측정하였다. 화상분석 소프트웨어 IMAGE-PRO PLUS(Media Cybernetics, Inc)와 Microsoft Excel을 이용하여 2차원 기공크기분포를 계산하였고, 이것을 3차원 변환 프로그램을 사용하여 3차원 기공크기 분포로 변환하였다[2]. 결정립의 크기는 직선교차법(linear intercept method)으로 계산하였다.

주사전자현미경 시편을 만들기 위하여 핵연료봉을 두께 2 mm 정도의 반원 모양으로 절단하여, resin mounting, polishing, cleaning을 하였다. 세라믹인 소결체 시편에 전도성을 주기 위하여 금 코팅(Polaron SC 7610)을 한 후 주사전자현미경(Philips XL-30)으로 시편표면의 사진을 촬영하였다.

3. 측정 및 분석 결과

그림 1에 K23-M04 시편의 밀도 측정 결과를 나타내었다. 세 시편의 밀도가 핵연료봉 제조시 소결체의 밀도 95.75% 보다 낮다. 그림 1에서 연소도가 큰 시편의 밀도가 낮다. 이는 연소도가 증가할수록 생성되는 기포(gas bubble)의 양이 증가하기 때문이다.

그림 2는 디스크 모양의 시편을 에칭한 후 찍은 광학현미경 사진이다. 그림 2(a)의 연소도 64 GWd/MTU에서의 미세구조는 소결체 표면 전체에 걸쳐 차이가 없다. 그러나 그림 2(b)와 같이 66 GWd/MTU에서의 미세구조는 영역간에 뚜렷한 차이가 발생하였다. 반경 2.376 mm이하에서 색이 짙은 구조와 그 이상에서는 색이 연한 구조를 보이고 있다. 반경 2.376 mm에서 내부 쪽으로 약 450 μm 의 색이 가장 짙은 띠가 보이고 있다. 그림 3에는 반경 2.376mm에서 찍은 500배율의 결정립 사진을 나타내었다. 경계를 기준으로 좌측 조직에서는

결정립 내부의 기포의 양이 우측보다 훨씬 많다. 기포의 양이 미세구조 차이의 원인임을 알 수 있다.

그림 4와 5에 K23-M04-1 및 K23-M04-4 시편의 기공 사진을 나타내었다. 그림 5의 64 GWd/MTU에서의 기공구조는 반경 방향으로 큰 변화가 없다. 그러나 그림 4의 66 GWd/MTU에서의 기공구조에서는 중간지역과 외곽지역에서 기포가 많이 생성되었다. 중간 지역의 기포 증가는 그림 2와 3의 결과와 같은 내용을 말해주고 있다. 외곽지역의 기포 증가는 rim 영역에 가깝기 때문이다.

그림 6에 K23-M04-1 및 K23-M04-4 시편의 기공크기분포를 나타내었다. K23-M04-1 및 K23-M04-4의 최대빈도수 기공의 크기는 각각 1.3 및 1.4 μm 이다. 그림 7에는 시편 K23-M04-1 및 K23-M04-4의 shape factor를 나타내었다. 연소도가 큰 K23-M04-1 시편의 기공들의 roundness가 더 크다.

그림 8와 9에 K23-M04-1 및 K23-M04-4 시편의 결정립 사진을 나타내었다. 표 2에는 K23-M04-1 및 K23-M04-4 시편의 결정립의 평균크기를 나타내었다. 연소도 64 및 66 GWd/MTU에서 결정립의 크기는 각각 8.59~10.47, 8.95~12.66 μm 이다. 결정립의 크기는 연소도가 증가하면 소결체 중앙에서는 증가하고, 가장자리에서는 감소하고 있다.

그림 10에는 연소도에 따른 rim 영역의 두께를 나타내었다. 그림 10 (b)에서 소결체 표면에서 안쪽으로 약 45 μm 의 구간에 걸쳐 결정립 내부에 기포가 많이 형성되고 있음을 알 수 있다. 그러나 여전히 rim이 형성되지 않았다. 연소도가 66 GWd/MTU인 그림 10 (a)인 경우, 소결체 표면에서 중앙쪽으로 88~180 μm 구간에 걸쳐 rim이 형성되어 있다. 이로부터 rim 이 64~66 GWd/MTU 사이의 연소도에서 형성된다고 추정할 수 있다.

그림 11과 12에는 연소도 64 및 66 GWd/MTU인 시편의 반경방향 주사전자현미경 사진을 나타내었다. 두 그림에서 rim 영역의 기공이 내부 영역의 기공보다 roundness가 더 크고 그 수도 더 많다. Rim 이외의 영역의 기공은 대부분 flake 모양을 하고 있다. 그림 13은 rim 영역에서 파쇄된 부분의 주사전자현미경 사진이다. 구에 가까운 기공이 많이 존재하고, 기공의 크기가 주변 결정립의 크기보다 크다.

4. 결론

이상 올진 2호기에서 방출된 K23-M04 핵연료 소결체의 미세구조를 측정하고 분석하였다. 시편은 연소도가 64 및 66 GWd/MTU인 핵연료봉 위치에서 절단하여 제조하였다. 연소도가 66 GWd/MTU인 시편에서 반경 약 2.4 mm를 기준으로 소결체의 내부에는 기포가 밀집되어 있었다. 외부는 결정립의 경계가 명확히 구분되었고, 기포는 결정립 내에 어느 정도 존재하였다. 연소도 64 GWd/MTU에서는 rim이 형성되지 않았고, 연소도 66 GWd/MTU에서는 소결체 표면에서 중앙쪽으로 88~180 μm 구간에 걸쳐 rim이 형성되어 있었다.

밀도는 제조시 95.8%, 연소도 64 GWd/MTU에서 93.7%, 연소도 66 GWd/MTU에서 92.9%로 측정되어, 연소도가 클수록 밀도가 낮았다. 64 및 66 GWd/MTU에서의 최대빈도수 기공의 크기는 각각 1.3 μm , 1.4 μm 이었다. Shape factor 계산 결과, 기공의 roundness는 연소도가 클 경우 더 좋았다. 연소도 64 및 66 GWd/MTU에서 결정립의 크기는 각각 8.59~10.47, 8.95~12.66 μm 이다. 결정립의 크기는 연소도가 증가하면 소결체 중앙에서는 증

가하고, 가장자리에서는 감소하고 있다. 주사전자현미경 측정 결과, rim 영역의 기공은 거의 원에 가까운 모양이었지만, rim 이외의 영역의 기공은 flake 모양을 하고 있었다. 기공의 수 또한 rim 영역에서 크게 증가하였다. Rim 영역에서 기공의 크기는 주변 결정립의 크기보다 컸다.

Rim 및 반경방향의 기포분포 차이 등 고연소도구조가 66 GWd/MTU에서 확인되었다. 따라서 고연소도 구조는 64~66 GWd/MTU 사이의 연소도에서 형성된다고 추정된다.

후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

- [1] 이찬복 외, "고연소도 핵연료 안전성 시험 및 평가기술 개발", KAERI/RR-2314/2002 (2003)
- [2] 김영민, 양재호, 김종헌, 김건식, 강기원, 송근우, "첨가물, 종자 및 기공형성제 첨가에 의한 UO_2 소결체의 기공 크기분포 및 형상 변화," 2000 춘계원자력학술발표회 논문집, 한국원자력학회 (2000).

표 1 K23-M04 시편의 밀도 측정 결과

| Sample number | Burnup (GWd/tU) | Axial position from the bottom of the rod (mm) | Density (g/cm ³) |
|---------------|-----------------|--|------------------------------|
| K23-M04-1 | 66 | 815~831 | 10.190 |
| K23-M04-2 | 66 | 2,274~2,289 | 10.185 |
| K23-M04-4 | 54 | 3,312~3,328 | 10.266 |

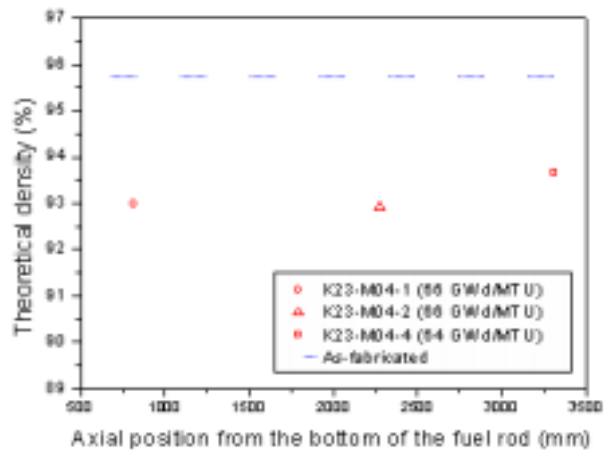


그림 1 K23-M04 시편의 밀도

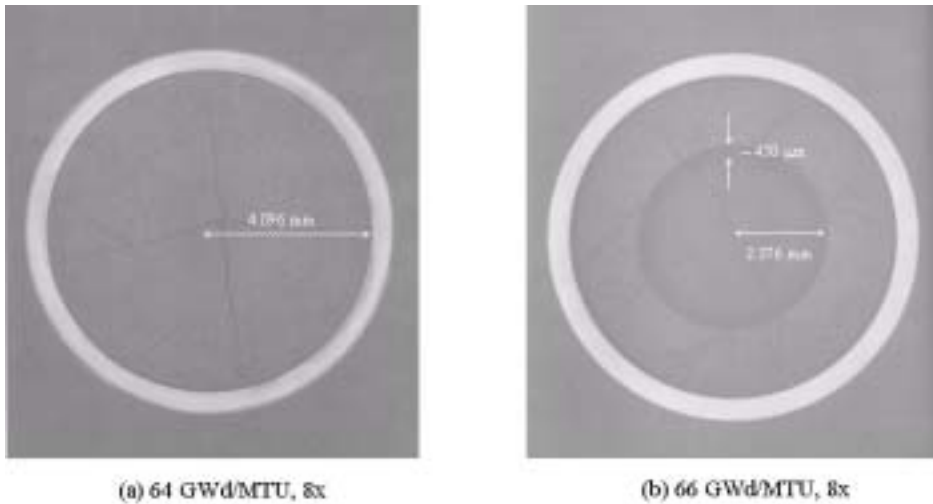


그림 2 예칭 시편의 광학현미경 사진

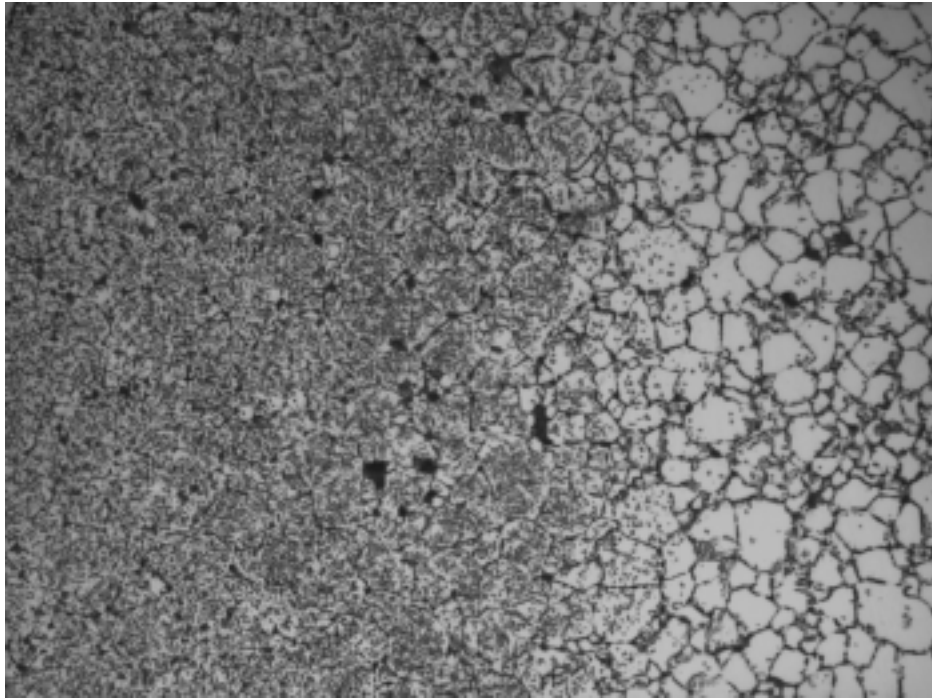
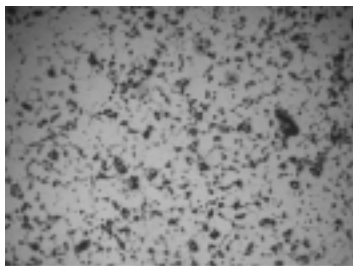


그림 3 K23-M04-1 시편의 반경 2.376 mm에서의 결정립 사진(500x)



(a) Central region, 400x

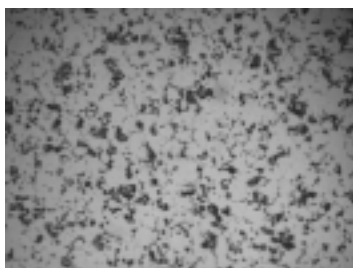


(b) Middle region, 400x

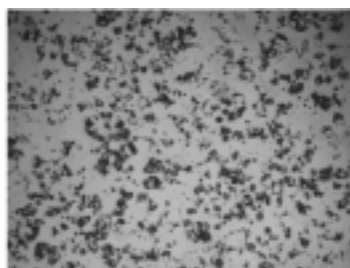


(c) Outer region, 400x

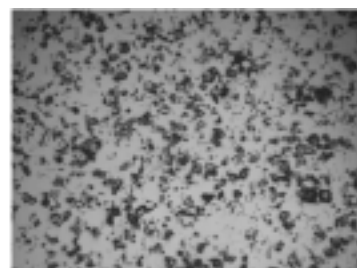
그림 4 시편 K23-M04-1의 기공 사진



(a) Central region, 400x



(b) Middle region, 400x



(c) Outer region, 400x

그림 5 시편 K23-M04-4의 기공 사진

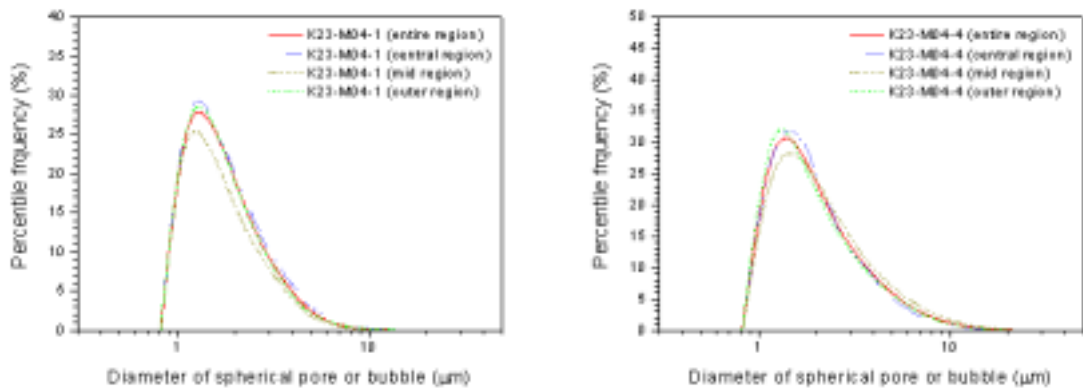


그림 6 K23-M04-1 및 K23-M04-4 시편의 기공크기분포

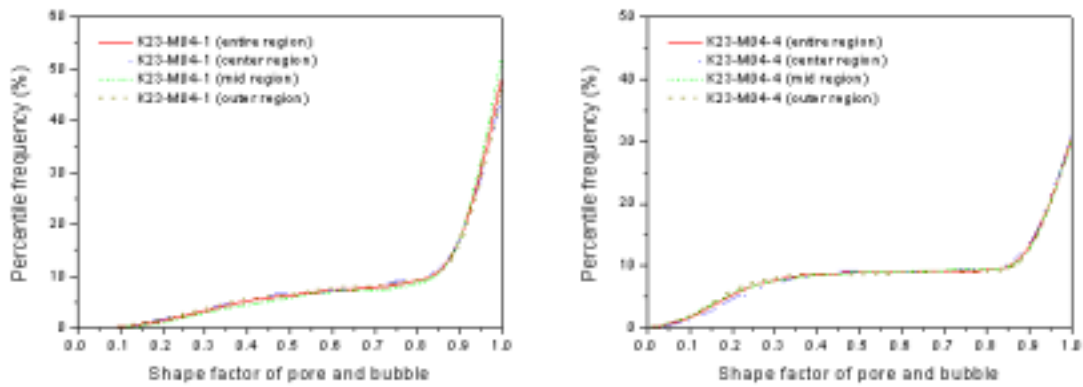


그림 7 K23-M04-1 및 K23-M04-4 시편의 shape factor

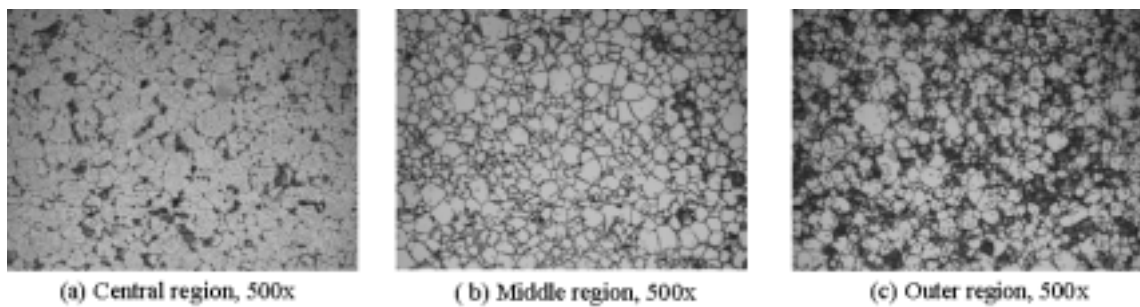


그림 8 K23-M04-1 시편의 결정립 사진

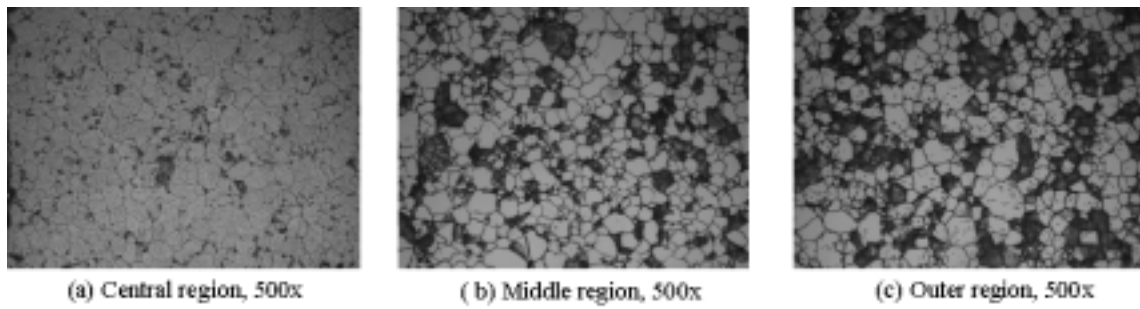


그림 9 K23-M04-4 시편의 결정립 사진

표 2 K23-M04-1 및 K23-M04-4의 결정립 크기(μm)

| Specimen \ Region | Center | Middle | Edge |
|-------------------|--------|--------|-------|
| K23-M04-1 | 12.66 | 8.95 | 9.44 |
| K23-M04-4 | 8.59 | 8.74 | 10.47 |

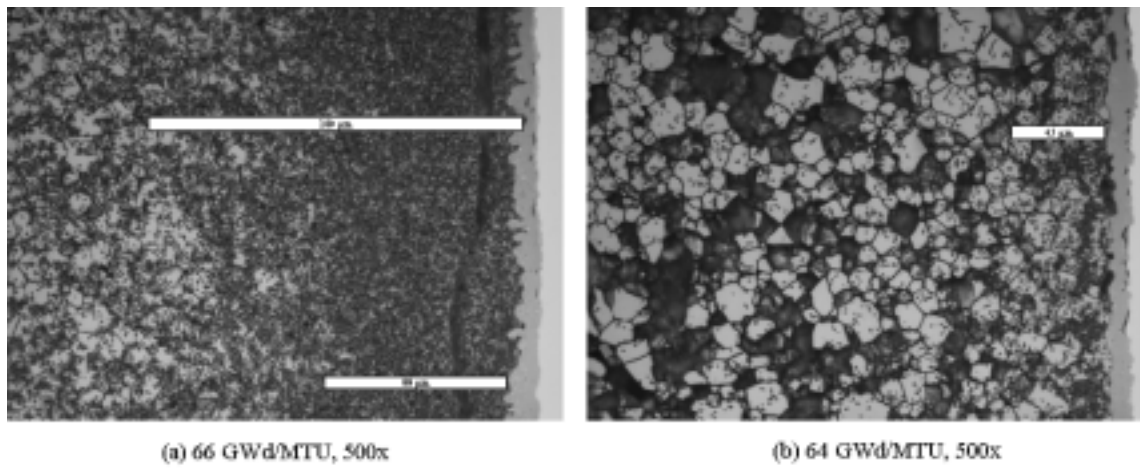


그림 10 연소도에 따른 rim 영역의 두께

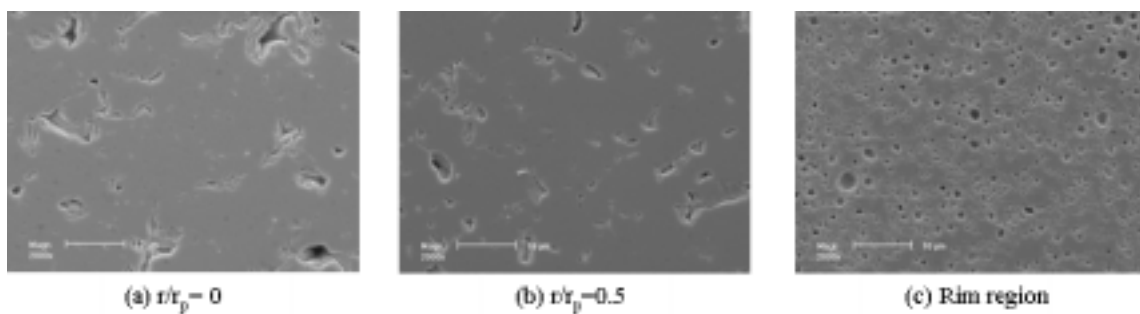


그림 11 연소도 66 GWd/MTU인 시편의 소결체의 반경방향 주사전자현미경 사진

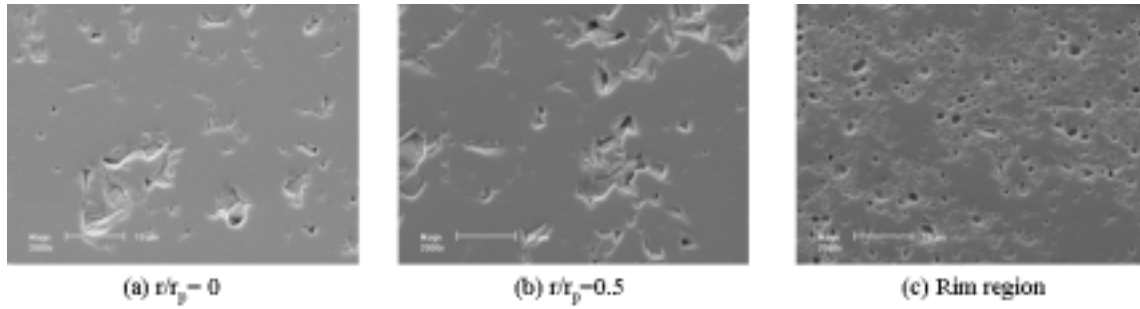


그림 12 연소도 64 GWd/MTU인 시편의 소결체의 반경방향 주사전자현미경 사진

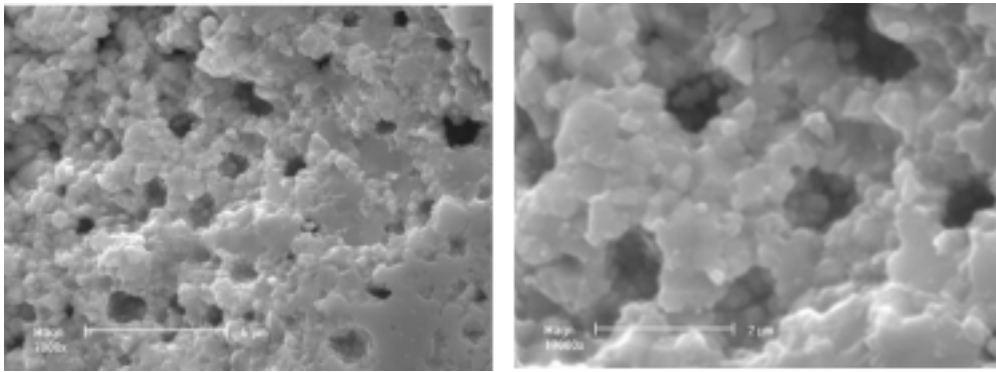


그림 13 연소도 66 GWd/MTU인 시편의 rim 영역 파쇄면