

2004 춘계학술발표회

한국원자력학회

반응도사고(RIA) 모사 시험로 시험결과 분석

Analysis of Test Results of RIA-simulating Test Reactors

김 선기, 이 찬복

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

최근 고연소도 핵연료의 반응도사고에 대한 관심이 부각되면서 사고시 핵연료손상 거동에 관한 국제공동연구가 연구로를 중심으로 활발히 진행되고 있다. 본 논문에서는 PBF, SPERT, IGR, BIGR, CABRI, NSRR RIA 모사시험 결과에 대한 간략한 분석이 소개된다.

Abstract

Recently, international co-works on failure behavior of high burn-up nuclear fuels have been briskly progressing in research reactors. In this paper, the test results of RIA-simulating test reactors such as PBF, SPERT, IGR, BIGR, CABRI, NSRR are introduced.

1. 서 론

가상의 반응도사고(RIA : Reactivity Initiated Accident)에 대한 안전기준은 사고가 발생하더라도 노심의 냉각능력을 상실하거나 1차 냉각계통의 기계적 손상이 발생하지 않아야 한다. 이를 만족시키기 위한 설계기준으로서 RIA 사고가 발생하더라도 노심의 냉각능력이 유지되고 핵물질이 냉각수내로 분산되는 경우를 방지하기 위해 반경방향으로 평균한 소결체의 피크 엔탈피 제한치를 규정하고 있다. 이 엔탈피 제한치는 각국마다 조금씩 다르며 미국과 스위스의 경우 280 cal/g, 일본은 230 cal/g, 프랑스는 200 cal/g을 적용하고 있다.

이러한 규제기준들은 1970년대 말의 RIA 모사 시험에서 얻어진 실험결과를 토대

로 확립된 것이었다. 이러한 초기 RIA 모사 시험에서는 비조사된 연료봉 또는 아주 낮은 연소도의 연료봉을 사용하여 실험하였다. 그러나 1993년 CABRI 시험로에서의 고연소도 연료봉에 대한 실험결과 약 30 cal/g의 낮은 엔탈피 값의 축적에서 핵연료봉 파손이 발생하였다. 이를 시발점으로 해서 일본, 미국, 러시아 등에서도 고연소도 핵연료봉의 RIA 규제 기준치에 대한 새로운 시험 및 분석에 착수하였다.

RIA 사고시에는 펠렛/피복관 상호작용 (PCMI, Pellet Cladding Mechanical Interaction)과 핵연료봉내 압력상승(internal over-pressurization)이 서로 작용하며 핵연료 피복관에 기계적 하중을 가하게 되어 피복관의 파손을 가져오게 된다. 펠렛과 피복관의 상호작용에 의해 피복관의 변형을 가져오게 되고, 피복관이 산화층이나 혹은 재료내의 수소화물에 의해 취화된 상태이므로 심각한 파손이 야기될 수 있으며 또한 핵연료 펠렛이 파편(fragmentation)으로 잘게 부서지며 파손부위를 통해 냉각수로 퍼져나갈 수 있게 된다. 최근의 RIA 모사 시험 결과 손상기구는 열적인 작용이 아니라 수소화물이 일조하는 PCMI 손상이 주도적이라는데 의견이 일치하고 있다. 따라서 고연소도 핵연료봉에 대한 새로운 규제기준 마련이 시급한 실정이다. 본 논문에서는 각국의 RIA 모사 시험을 간단히 소개하고 주요 결과를 소개하고자 한다.

2. 반응도사고 모사시험 현황

2.1 미국 PBF, SPERT

1978~1980년에 미국 원자력규제위원회(NRC : Nuclear Regulatory Commission)의 지원 아래 PBF 시험로를 이용한 반응도 시험이 수행되었다. 이 원자로는 수조 내에 구동노심이 위치하며 가압루프가 있어서 여러 가지 조건의 실험이 가능하였다. 이 원자로의 자연적 펄스폭(natural pulse width)은 약 20 msec 였으므로 전형적인 반응도사고 거동을 모사할 수 있었다. 비조사 연료봉, 조사 연료봉 및 집합체 연료봉에 대한 시험이 수행되었다. 280 cal/g의 엔탈피 인허가 제한치를 확인하기 위한 목적의 시험이었기 때문에 상대적으로 높은 수준의 엔탈피를 주입하였다. 조사 연료봉의 경우 연소도는 60,000 MWd/tU 이하의 연료봉을 사용하였다.

SPERT 시험로에서도 1970년대 말에 미국 원자력위원회(AEC : Atomic Energy Commission)가 지원한 조사 연료봉에 대한 시험이 수행되었다. SPERT 시설에는 여러 가지 노심이 있는데 시험에 사용된 것은 캡슐구동노심(CDC : Capsule Driver Core)이므로 CDC 시험이라고도 불려졌다. 상온에서 물이 채워진 캡슐에서 단일연료봉 시험을 수행하였다. 캡슐구동노심의 SPERT 시험로는 약 20 msec의 자연 펄스폭을 가지고 있다. 대부분의 시험연료봉은 GE의 기술시방서에 따른 BWR 형태의

연료봉이었다. 나머지 시험용 그룹은 고에너지 축적을 위해 특별히 제작된 외경이 작은 연료봉이었다. 이에 따라, 소형 연료봉은 피복관 두께가 상대적으로 얇았다. 조사연료봉의 최대 연소도는 33,000 MWd/tU 였다.

2.2 러시아 IGR

1980년대와 1990년대 초반에 러시아의 Kurchatov 연구소에서는 IGR 시험로를 이용한 대규모 반응도 모사시험이 진행되었다. IGR 시험로는 노심 가운데에 시험채널을 갖춘 우라늄-흑연 펄스 원자로이다. 상온에서 시편을 캡슐에 넣은 상태에서 시험이 수행되었으며 시험캡슐에는 고연소 연료봉과 비조사 연료봉을 넣어 시험하였다. 안전상의 이유로 조사 연료봉에 대한 시험에는 계측장비의 관통이 허용되지 않아 계측이 이루어지지 않았다. 이 원자로의 자연 펄스폭은 약 700 msec 정도이며 전형적인 실제 원자로 반응도사고 조건과 비교할 때 상당히 큰 값이다. 고연소도 연료봉은 VVER 상용로에서 조사된 연료봉이며, 이는 피복관 조성이 Zr-1Nb로서 Zircaloy-2 혹은 Zircaloy-4와는 조성이 다르며 또한, 소결체 가운데에 구멍이 나있는 점이 PWR 소결체와 다른 점이라고 할 수 있다.

2.3 프랑스 CABRI

고연소도 피복관이 아주 낮은 엔탈피에서도 연료봉의 파손이 발생하였다는 보고는 프랑스 원자력방호연구소(IPSN : Nuclear Safety Protection Institute)의 CABRI 시험로의 결과로부터 비롯되었다. 이 원자로는 구동노심이 수조에 있으며 시험루프는 액체 나트륨을 사용하여 냉각하는 구조이다. 이 시험루프는 애초에 고속로 연구를 위해 설계되었으나 최근에는 경수로 프로젝트에 이용되고 있다. 따라서 열전달 과정은 경수로 조건과 다르며 나트륨을 액체상태로 유지하기 위해서는 시험온도가 항상 고온으로 유지해야 한다.

대부분의 시험연료봉은 프랑스의 상용원자로에 이용되는 표준연료봉을 사용하여 1990년대 중반부터 시험을 수행하고 있다. 펄스폭은 원자로 노심의 도플러 제한 특성으로부터 주로 구하였으며 9.5 msec의 값으로 시험이 수행되었다. 이러한 펄스폭은 실제 경수로 반응도사고 조건과 비교하여 좁은 편이기 때문에 펄스폭을 증가시켜서 실험을 수행해오고 있다. 최근에는 나트륨 루프를 경수로 루프로 교체하려는 프로그램에 착수하고 있다.

CABRI REP Na 프로그램에 의한 반응도사고 모사시험은 고연소도에서의 핵연료 엔탈피 제한기준을 평가하기 위한 목적으로 프랑스 원자로안전방호연구소(IPSN : Nuclear Protection and Safety Institute)의 CABRI 시험로에서 고연소도 LWR 연료에 대해 수행되는 시험으로서 총 12건의 시험이 수행되었고, 그 중 PWR용 Zircaloy-4 피복관을 사용한 연료봉에 대해 7건, PWR용 고연소도 핵연료 피복관인

M5 피복관을 대상으로 한 시험이 1건이었으며, MOX 핵연료에 대한 시험이 4건이었다.

반응도사고 모사시험 결과, Na-1, Na-8, Na-10의 경우에만 피복관의 손상이 발생하였고 그 외의 경우에는 손상이 발생하지 않았다. 여기서 CABRI REP의 반응도 사고 모사시험에 의해 피복관 손상이 발생한 Na-1, Na-8 및 Na-10의 공통점으로서 핵연료봉에 산화막의 스폐링(spalling)과 hydride blister가 관찰되었다는 점을 주목할 필요가 있다.

현재까지 규명된 CABRI 시험프로그램의 주요결과에 의하면, 핵연료봉내 급격한 압력상승에 의해 피복관에 가해지는 기계적 하중보다는 핵연료 펠렛에 의한 PCMI 기구가 핵연료 피복관의 주요 파손기구이며 피복관내 수소화물에 의한 취화가 파손의 결정적인 원인인 것으로 밝혀졌다. PCMI는 핵연료의 열팽창이나 혹은 핵분열 기체에 의한 swelling에 의해 부피가 팽창하면서 펠렛과 피복관이 접촉을 하게 되고 이때 피복관에 가해지는 하중이 조사취화나 혹은 수소취화에 의해 연성이 급격히 저하된 피복관이 그러한 하중을 견디지 못할 경우에는 파손이 발생하게 되는 것이다. 또한, CABRI 시험프로그램 결과 64,000 MWd/MtU 연소도까지는 원자로 내에서의 피복관 산화막의 spalling이나 국부적인 hydride blister가 존재하지 않는 한 피복관 파손이 발생하지 않았다는 점이 중요 연구결과로 분석된다.

일본의 원자로 안전성 관련 연구로인 NSRR의 최근 시험프로그램에서도 RIA 사고 시 낮은 엔탈피에서 조차 피복관내의 수소화물의 영향으로 인한 PCMI 파손이 발생할 수 있음이 PWR 및 BWR 고연소 핵연료를 대상으로 한 실험에서 밝혀졌으며 이는 CABRI 시험프로그램의 결과와 일치하는 것으로서 현재까지의 CABRI 및 NSRR 시험프로그램의 연구결과로부터 반응도사고 시 고연소도 핵연료 피복관의 파손기구는 수소화물의 취화영향과 관련한 PCMI, 소위 hydride-assisted PCMI 인 것으로 결론지을 수 있다.

2.4 일본 NSRR

CABRI에서의 저에너지 연료봉 손상이 보고된 이후에 일본의 NSRR 시험에서도 핵연료 분산현상이 발생한 피복관 파손 현상이 관찰되었다. NSRR 시험로는 일본원자력연구소(JAERI)에서 운영하며 수조내에 환상 노심펄스를 가지는 TRIGA 형 원자로이다. NSRR 시험에는 경수루프가 시험에 사용되었지만 고방사능 연료봉의 경우 상온에서 계장캡슐을 이용하였다. NSRR의 자연 펄스폭은 약 5 msec이며 일본의 상용 PWR에서 연소된 연료봉을 시험 대상으로 하였다. 그러나 일부 시험에 사용된 연료봉은 헬륨으로 가압하지 않은 JMTR 시험로에서 조사된 연료봉을 사용하

였다. 이는 피복관 creep이나 산화과정을 거치지 않았으므로 전형적인 PWR 조건은 아니다. 그럼에도 불구하고 피복관은 중성자 조사에 의해 취화되어 손상모드에 영향을 미친다. 또한 중간 연소도의 상용 BWR 연료봉에 대한 시험도 수행되었다.

2.5 BGR

최근의 CABRI 시험결과 및 NSRR 시험결과에 따라 펄스폭이 시험결과에 중요한 영향을 미칠 수 있음을 확인되었다. 기존의 IGR 시험로의 경우 약 700 msec 정도의 상당히 큰 펄스폭을 가지고 시험이 수행되었고 따라서 실제 원자로 조건을 제대로 모사할 수 없었기 때문에 IGR 시험과 거의 유사한 새로운 일련의 시험이 모스크바의 BGR 시험로에서 수행되었다. BGR 시험로는 약 3 msec의 좁은 펄스폭을 가지고 시험을 수행이 되고 따라서 IGR 시험보다 실제 원자로 조건을 제대로 모사하여 시험을 수행할 수 있었다.

3. 시험로 연구결과

PWR의 경우 제어봉 인출사고가 발생할 경우 선출력은 정상상태에 비하여 엄청나게 증가하게 되는데 이때 전형적인 출력펄스는 그림 1과 같이 펄스의 높이가 높으면 폭은 작게 되고 펄스의 높이가 낮으면 펄스폭이 넓은 형태를 보인다. 그림 2에는 반응도사고시의 펠렛 내에 축적되는 피크 엔탈피와 펄스폭과의 상관관계를 나타내었다. 그림에서 보듯이 펠렛 내에 축적되는 피크 엔탈피가 증가할수록 펄스폭은 감소하며 약 60 cal/g 이상의 엔탈피에서는 펄스폭의 감소가 포화되는 거동을 볼 수 있다. 그림 3은 반응도사고시 펠렛 내에 축적되는 피크 엔탈피가 피복관 온도에 미치는 영향을 보여주는 결과이다. 엔탈피 축적량이 증가할수록 피복관의 온도는 증가하게 되고 동일한 엔탈피 축적량의 경우에는 펄스폭이 넓을수록 피복관의 온도는 더 크게 증가함을 알 수 있다. 피복관의 온도가 높다는 것은 피복관의 파손 확률이 그만큼 줄어들게 되므로 피복관 파손 측면에서 볼 때 펄스폭이 좁은 것이 피복관 파손의 위험성이 더 크다고 볼 수 있다.

그림 4에 시험로의 시험결과로부터 연소도에 따른 핵연료 펠렛의 피크 엔탈피와의 상관관계를 나타내었다. Open symbol은 피복관의 파손이 발생하지 않은 경우이고 solid symbol은 피복관의 파손이 발생한 경우를 나타낸다. 연소도가 증가함에 따라 피크 엔탈피는 감소하고 있음을 보여주고 있다. 연소도가 0인 경우에는 약 200~350 cal/g 범위의 에너지가 펠렛 내에 축적되었을 때 피복관 파손이 발생하였으나 연소도가 50,000 MWd/tU를 넘게 될 경우에는 100 cal/g 이하의 에너지가 축적되어도 피복관 파손이 발생할 수 있음을 확인할 수 있다. 또한, 동일한 연소도의 경우에도 피복관의 파손이 발생하는 에너지 값은 각 시험로마다 크게 차이가 나고 있다. 고연소도로 갈수록 PCMI에 의한 피복관 파손이 저에너지에서도 발생하는 것은

고연소도 핵연료 피복관내 수소침투량과 관련지을 수 있다. 고연소도 핵연료피복관의 경우 산화가속화가 발생하는데 산화량에 따라 피복관 외면으로의 수소침투도 가속화되므로 피복관의 취화 또한 가속화된다.

연소도 60,000 MWd/tU인 경우 피복관내 수소침투량은 약 200~800 ppm 정도로 관찰이 되는데, 냉각수 온도 330~340°C에서 수소의 고용도한계는 약 150 ppm이고 여분의 수소 약 600 ppm 이상은 수소화물로 석출이 되므로 석출된 수소화물에 의해 피복관이 취화하게 된다. 그러나 이러한 수소화물이 피복관 내에 균일하게 분포하는 것이 아니고 그림 5에서 보는 것처럼 수소는 고온에서 저온으로 확산하여 피복관 외면부위에 집중되어 석출되므로 실제 피복관 외면부위의 수소함량은 그 이상의 수소함량을 가지므로 피복관 취화정도는 더욱 더 크다고 볼 수 있다. 따라서 고연소도 핵연료 피복관은 저연소도 피복관에 비해 수소에 의해 취화 정도가 더 심각하고 따라서 낮은 에너지에서도 파손이 가능하게 된다. 이러한 결과는 최근의 CABRI 시험 및 NSRR 시험결과에서도 확인된 사항이며 두 시험결과에 의해 반응도사고의 주요 손상기구는 hydride-assisted PCMI로 알려져 있다.

그림 6에 NSRR 시험결과를 나타내었는데 그림에서 보는 것처럼 일본 NSRR 시험프로그램에 사용된 PWR 핵연료의 연소도는 50,000 MWd/tU이었고 피복관내의 수소함유량은 400 ppm이었는데 핵연료 엔탈피 증가가 60 cal/g로 낮았음에도 불구하고 피복관의 파손이 발생하였다. 또한, BWR 핵연료의 연소도는 61,000 MWd/tU였으며 피복관내의 수소함유량은 불과 200 ppm이었고 핵연료 엔탈피 증가가 70 cal/g 이었음에도 불구하고 PWR 핵연료와 마찬가지로 피복관의 파손이 발생하였다. 결국 수소화물이 석출되면서 피복관이 취화되어 핵연료 펠렛의 열팽창을 수용할 정도로 변형을 못하고 쉽게 파손되는 것이다. 그림 7에 REP Na-10 시험에서의 파손 핵연료 단면사진을 나타내었다. 핵연료에 축적된 enthalpy가 79 cal/g임에도 불구하고 피복관 외면의 hydride blister에 의한 영향으로 파손이 일어났음을 알 수 있다. 사진속의 직사각형으로 표시된 부분이 hydride blister가 형성된 부분이다.

한편, Nb를 함유하는 피복관의 경우 부식저항성이 좋다고 알려져 있기 때문에 연소도가 같을지라도 산화량은 기존의 다른 피복관에 비해 적다. 따라서 고연소도 피복관일지라도 산화에 의한 취화 및 이에 따른 수소취화가 상대적으로 덜 심각하기 때문에 저에너지에서의 PCMI 파손이 상대적으로 줄어들게 될 수 있다. 이러한 예가 바로 러시아 E110 피복관(Zr-1Nb)을 사용한 IGR, BIGR 시험이다. 따라서 반응도사고에 있어서 연소도는 피복관 손상에 미치는 결정적인 변수는 아니며 산화량(결국 수소침투량도 포함)과 더욱 더 관련되어 있다고 볼 수 있다.

그림 8에 산화막 두께에 따른 펠렛의 피크 엔탈피 변화량이 피복관 파손에 미치

는 영향을 각 시험별로 도시하였다. 반응도사고시에 펠렛의 팽창에 의해 피복관에 작용하는 응력은 펠렛의 피크 엔탈피 값 자체보다는 반응도사고시의 펠렛내 엔탈피 변화량과 더 밀접한 관련이 있다고 볼 수 있다. 그림에서 보는 것처럼 산화막의 두께가 10 μm 내외인 경우에는 50~200 cal/g 범위의 에너지에서도 피복관 손상이 발생하지 않았고 적어도 150 cal/g 정도의 에너지 이상이 되어야 피복관이 손상되었다. 산화막 두께가 증가할수록 피복관 파손이 발생하는 펠렛내 엔탈피 증가량은 감소하였으며 산화막 두께가 20 μm 를 넘게 되면 1000 cal/g 이내의 엔탈피 증가량 만으로도 손상이 관찰되었다. 20 μm 라는 산화막 두께 자체는 피복관을 심각하게 취화시킬 정도의 산화량은 아니지만 산화에 따른 수소화물 석출에 기인하여 피복관의 취화가 상승되었다고 판단된다.

그림 9는 CABRI 시험 및 NSRR 시험 결과로서 펠렛내 엔탈피 변화량에 따른 피복관의 소성영역에서의 hoop strain값이다. 이 값은 손상되지 않은 피복관에 대한 시험자료이다. 펠렛내 축적된 엔탈피 값이 클수록 펠렛의 팽창에 의해 피복관에 작용하는 하중이 증가하므로 피복관의 hoop strain이 증가함을 알 수 있다. 그러나 시험자료의 scattering이 상당히 큼을 확인할 수 있다. NSRR 시험결과의 경우 왼쪽에는 PWR용 피복관 시험결과이고 중앙부분은 BWR용 피복관 시험결과이며 오른쪽 부분은 JMTR과 ATR 재료시험로에서 조사된 연료봉으로부터 얻어진 시험자료이다. 따라서 이러한 현상은 피복관 수명말기(end-of-life)에서의 펠렛과 피복관이 gap size의 차이에서 비롯된 것으로 해석할 수 있다. PWR 피복관의 경우 BWR 및 시험로에 비해 고압에서 사용되며 두께도 얇기 때문에 피복관의 creepdown이 크게 되며 따라서 gap closure가 BWR 및 시험로에 비해 크게 된다. 이러한 이유로 인하여 BWR 및 시험로에서 연소된 연료봉의 경우 소성변형이 지연되는 경향을 보이는 것으로 유추해 볼 수 있다.

4. 결론 및 제언

PBF, SPERT, IGR, BIGR, CABRI, NSRR RIA 모사시험 결과를 분석한 결과 펠렛내에 기존 저연소도 핵연료의 RIA 엔탈피 제한치 보다 낮은 값의 엔탈피가 축적이 되어도 반응도 사고는 발생할 수 있으며 이는 고연소도 핵연료의 경우 피복관 산화 및 이에 따른 수소화물 석출에 기인한 피복관의 취화와 관련이 있음을 확인하였다. 또한 CABRI 및 NSRR 시험프로그램 결과로부터 반응도사고시의 고연소도 핵연료 피복관의 주된 파손기구는 Hydride-assisted PCMI로 결론지을 수 있다. 따라서 고연소 핵연료 피복관의 RIA 엔탈피 제한치의 경우 고연소 피복관의 수소침투량을 반영하여 적절한 엔탈피 제한치가 수립되어야 할 것이다.

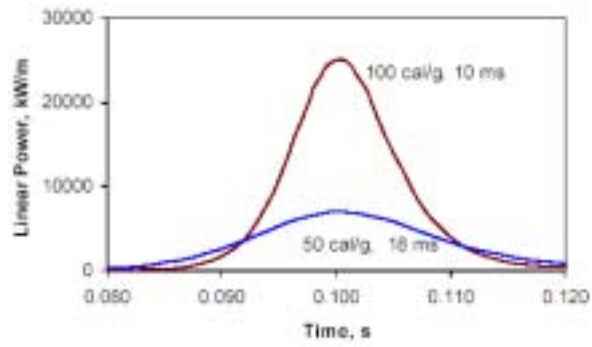


그림 1. 반응도사고시의 전형적인 PWR 출력펄스형태

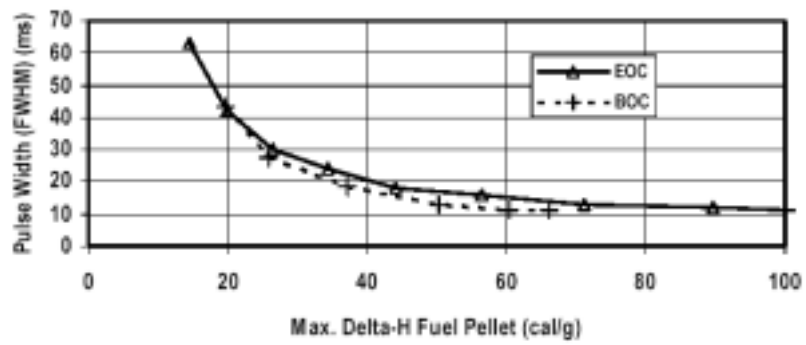


그림 2. 반응도사고시의 펠릿내 축적되는 피크 엔탈피와 펄스폭과의 상관관계

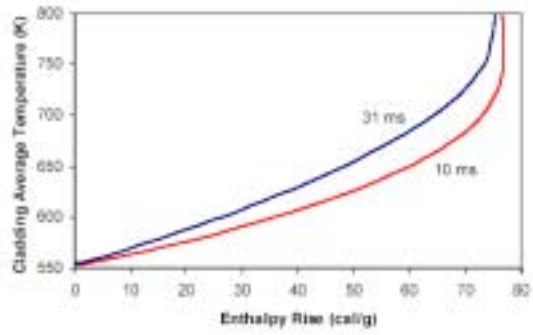


그림 3. 반응도사고시 펠릿 내에 축적되는 피크 엔탈피가 피복관 온도에 미치는 영향

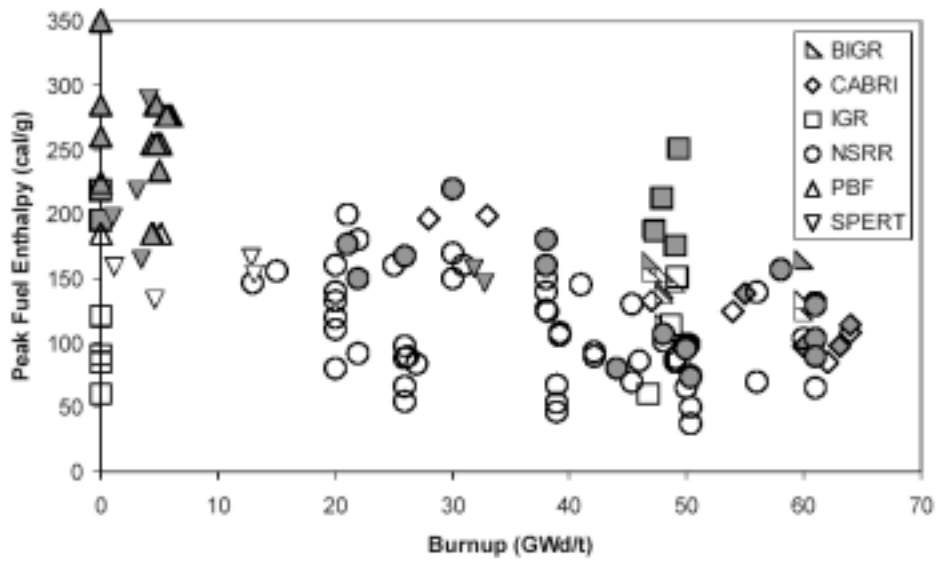


그림 4. 연소도와 피크 엔탈피에 따른 RIA 모사 시험결과

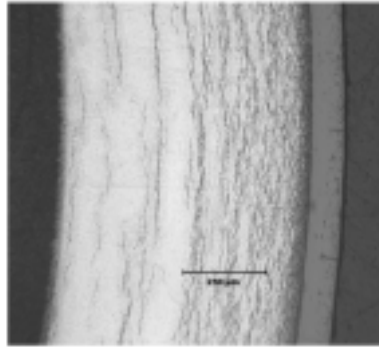


그림 5. 고연소도 PWR 핵연료 피복관의 수소화물 석출 Morphology
(Burnup : 67,000 MWd/tU, HBR Rod AO2)

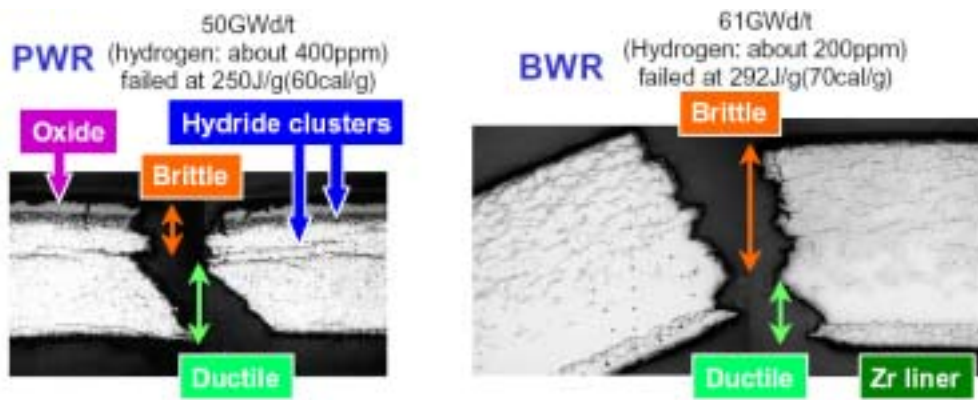


그림 6. 고연소도 핵연료 피복관의 RIA 파손 거동
(NSRR 시험프로그램)

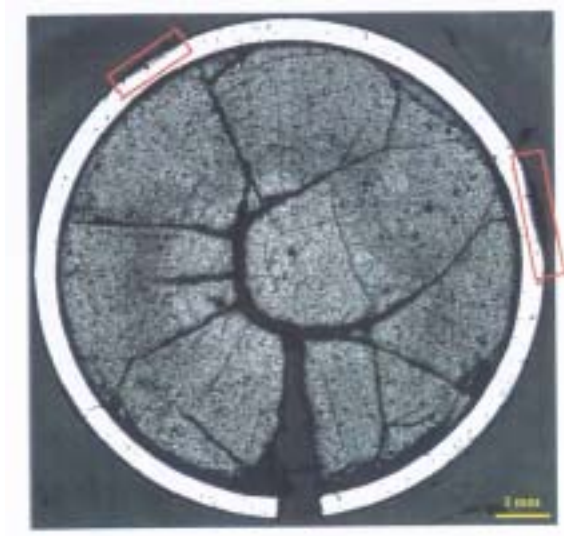


그림 7. CABRI Rep Na-10 시험 핵연료 손상 단면사진

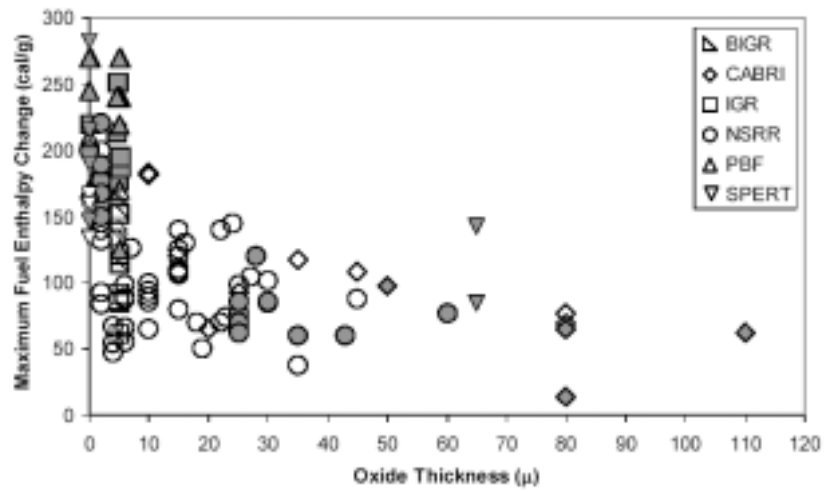


그림 8. 산화막 두께 및 피크 엔탈피 변화량이 피복관 파손에 미치는 영향

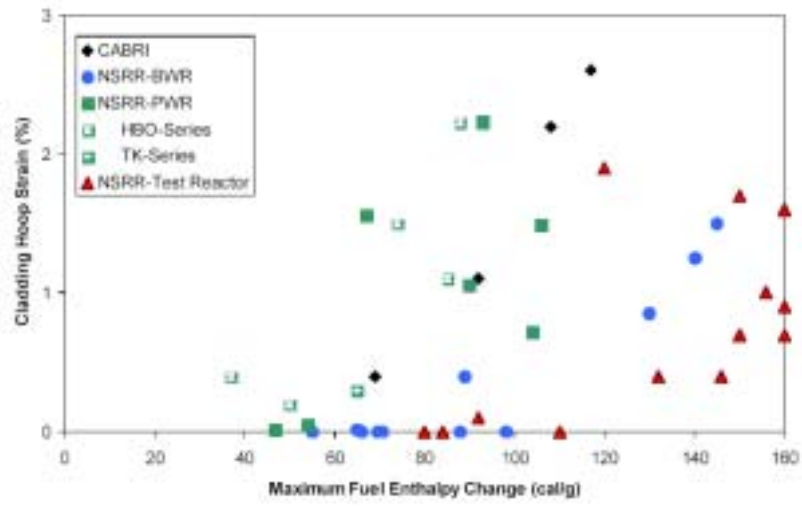


그림 9. 피크 엔탈피 변화량에 따른 피복관 소성영역에서의 hoop strain 변화 (CABRI, NSRR)