

고연소도 핵연료의 LOCA 안전기준 분석

Analysis Of LOCA Safety Criteria In High Burn-up Nuclear Fuel Cladding

김 선기, 이 찬복

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

최근의 고연소도 핵연료 추세에 의해, 고연소도 핵연료에 대한 기존 LOCA 안전규제기준에 대한 적용 타당성 여부에 관한 연구가 새롭게 국제적으로 추진되고 있다. LOCA 사고 시의 고연소도 핵연료피복관의 실제 거동을 재평가하며, 현재 쟁점이 되고 있는 주요 이슈를 다음과 같이 분석하였다.

- 정상가동중의 냉각수 산화에 의해 형성된 산화량을 ECR 계산시 포함 여부
- 급랭시 피복관 연성에 미치는 피복관내 수소의 영향
- Niobium 함유 고연소도용 핵연료피복관의 기존 LOCA 안전기준 적용의 타당성
- 고압 수증기 분위기하에서의 산화 가속화

Abstract

According to the trend toward high burn-up nuclear fuel, it is issued recently that whether current LOCA criteria are also applicable to high burn-up nuclear fuel cladding or not. The real behaviors of high burn-up nuclear fuel cladding under LOCA are estimated and the main issues are analysed as follows :

- Whether oxidation during the normal operation should be inclusive in ECR calculation or not
- The hydrogen effects on ductility of cladding on quenching
- Applicability of Niobium-containing high burn-up nuclear fuel cladding to current LOCA criteria
- Acceleration of steam oxidation kinetics under high pressure steam

1. 서론

1973년 LOCA 안전기준 제정을 위한 Rule-Making Hearing 이후로 현재까지 그 기준이 적용되어 오고 있다. 그러나, 그 당시의 안전기준 제정의 근간이 되었던 실험 데이터는 낙후되고 매우 단순한 실험장치에 의해 생산되었으며 실제 LOCA 사고시의 핵연료 피복관의 거동을 제대로 모사하지 못하였다. 따라서 1980년대에 들어와서 ANL 및 JAERI 등에서 이에 대한 연구가 수행되어 왔고, 1990년대에는 프랑스의 LOCA 시험 프로그램이 시작되었으며 이는 네 개의 시험 프로그램으로 이루어졌는데 그 시험 프로그램은 각기 다른 목적을 가지고 있었다. 특히 최근에는 고연소도 핵연료에도 기존의 안전기준이 적용가능한지에 대한 논쟁이 국제적으로 이슈가 되면서 이에 대한 연구가 활발히 진행 중에 있다. 따라서 본 연구에서는 실제 LOCA 사고 시의 고연소도 핵연료피복관 거동의 재평가 및 현재 부각되고 있는 주요 이슈를 분석하였다.

2. 본론

2.1 LOCA 안전규제기준

원자로 가상 사고 시나리오인 냉각수 상실사고(LOCA, Loss Of Coolant Accident)는 원자로 냉각시스템(RCS)의 감압(depressurization), 압력용기 하단부의 충수(filling) 및 노심내로의 re-flood, 이렇게 크게 3단계로 분류할 수 있는데, 먼저 제 1단계에서는 냉각수 상실에 의해 붕괴열 및 피복관에서 냉각수로의 열전달 저하로 인해 급격한 온도상승이 수반된다. 원자로 냉각시스템의 감압과 핵연료봉내 압력의 증가로 인한 압력차이로 인하여 핵연료 피복관은 부풀어 오르게(ballooning) 되고 핵연료봉내 압력을 견딜 수 없게 되면 파열(burst)이 발생하게 된다. 제 2단계에서는 계속되는 온도상승으로 인해 피복관과 고온에서의 수증기산화 반응이 일어나게 된다. 만일 제 1단계에서 피복관의 파열이 발생하게 된다면 피복관의 외면 뿐만 아니라 내면에도 산화반응에 의한 산화막이 형성된다.

피복관과 고온 수증기와의 산화반응은 피복관 재료 내부로의 산소이온의 확산(diffusion)에 의해 지배를 받게되며, 이에 따라 Zr합금 피복관 재료의 가장 바깥쪽에는 산화막이, 그 다음 oxygen-stabilized α -Zr phase layer가 형성되며 가운데는 BCC 결정구조를 갖는 β -Zr phase가 형성되게 되어 총 3개의 상을 갖는 미세조직으로 변하게 된다. 문제는 산화막 자체가 상당히 재료적으로 취약(brittle)해서 피복관 재료의 연성(ductility) 저하를 가져온다는 사실이며 따라서 제 3단계인 노심내로의 re-flood 단계에서는 급랭(quenching)에 의한 열충격(thermal shock)에 의해 피복관의 심각한 파손이 야기될 수 있다. LOCA 사고시 피복관 재료의 이러한 취화를

가져오는 원인이 고온에서의 수증기 산화이고 그 산화속도는 온도증가에 따라 지수적으로 증가하므로 산화량 뿐만 아니라 피복관의 최대 허용온도도 안전성 규제기준에 포함되게 된다.

1973년 Rule-Making Hearing에서 합의되어 10CFR50.46에 규정되어 있는 2가지 안전규제기준은 아래와 같다.

○ PCT (Peak Cladding Temperature) Criteria

피복관의 최대온도는 2200F(1204°C)를 넘어서는 안된다.

○ ECR (Equivalent Cladding Reacted) Criteria

총 산화량(total oxidation)의 계산 값이 수증기 산화전의 총 피복관 두께의 17%를 초과할 수 없다.

여기서, "총 산화량"이라는 것은 산화반응에 의하여 흡수되는 산소가 모두 stoichiometric oxide(ZrO_2)로 변환된다고 가정했을 경우, 산화반응에 의해 손실된 피복관 금속재료의 두께를 의미하며 총 산화량의 계산은 Baker-Just kinetic model을 사용해야 하는 것으로 규정되어있다. LOCA 사고시 제 1단계에서 피복관의 파열이 발생할 경우 피복관의 외면 뿐만 아니라 내면까지도 산화반응에 의한 산화막이 형성되므로 ECR 계산에 이를 모두 반영하여야 한다. 위 안전규제 기준은 급랭시의 피복관 연성평가를 위해 Hobson[1,2]에 의해 1972-1973년에 77-300F(25-149°C)의 온도에서 수행된 slow-ring-compression test 결과에 기초하여 확립되었으며, 2400F(1315°C)에서 수증기 산화된 시편이 2200F(1204°C)에서 산화된 시편보다 동일한 ECR 임에도 불구하고 훨씬 더 취화된 실험결과를 보여주었기 때문에 피복관 최대허용온도에 대한 안전규제 기준이 1973년 Rule-Making Hearing에서 2200F(1204°C)로 채택되게 된 배경이다.

2.2 LOCA 안전규제기준에 대한 초기 연구

1960년대 말과 1970년대 초의 General Electric(GE)과 Argonne National Laboratories(ANL)에서 수행된 산화실험 및 급랭(quenching) 실험에 의하면 ECR이 17%에 이를 때에 급랭에 의한 피복관 파손이 발생하였고 이러한 결과가 반영되어 피복관의 17% ECR 안전규제 기준의 모태가 되게 되었다.

(가) ANL tests

LOCA 사고시의 핵연료 안전성 평가에 대한 첫 번째 시험프로그램은 1960년대 말에 ANL에 의해 UO_2 펠렛이 장입된 미조사 Zircaloy-4 핵연료봉 18개를 대상으로 수행되었다. 본 시험프로그램은 실험데이터의 부족 및 다음과 같은 몇 가지 실험

상의 한계를 지니고 있었다. 첫째, 몇몇 피복관의 파손이 ECR 값이 약 18% 일 때 발생하였는데, 이때의 실험온도의 peak값이 1600°C 이상이었고 이는 피복관의 최대 허용온도 즉, PCT 기준인 1204°C 보다 훨씬 높은 온도였다. 둘째, 피복관의 길이 방향에 대해 균일한 온도분포라고 가정을 하여 ECR을 결정하였고, 따라서 ECR 측정값은 모두 평균값이었다. 그러나 실제 노심내에서의 핵연료 피복관의 경우 길이 방향에 대해 균일한 온도분포를 나타내지 않으며, 조사후시험 결과에 의하면, 총 피복관의 길이 중 최고온도를 갖는 위치에서의 산화량이 그 평균값의 적어도 40% 이상인 것으로 잘 알려져 있다. ANL 시험프로그램에서 파손시의 ECR 값이 실제로는 약 27% 이상인 것으로 평가되었다.

(나) GE tests

GE 시험에서는 UO₂ 펠렛이 포함되지 않은 미조사 Zircaloy-2 핵연료봉 14개를 대상으로 실험이 수행되었는데 본 시험프로그램도 초기 ANL 시험프로그램과 마찬가지로 실험데이터의 부족 및 실험상의 한계를 지니고 있었다.

2.3 1973년 Rule-Making Hearing 이후의 LOCA 안전규제기준 연구

10CFR50.46 안전규제기준 발표 이후에 수행된 2개의 주요 시험프로그램에 의해 기존의 17% ECR 안전기준이 매우 보수적인 기준임을 확인되었으며 각각의 시험프로그램의 내용은 다음과 같다.

(가) ANL tests

ANL 시험프로그램에서는 알루미늄(Al₂O₃) 펠렛을 장입한 미조사 Zircaloy-4 핵연료봉에 대한 284개의 종합시험(integral test)이 수행되었다. 피복관은 전기적으로 가열하였으며 일련의 종합시험은 피복관 파열시험, 고온 수증기 산화반응 실험 및 급랭(quenching) 시험으로 구성되었다. 급랭시험의 경우 냉각속도를 달리한 실험을 수행하여 냉각속도의 영향을 평가하고자 하였다. 본 시험 프로그램의 결과에 의하면, 1204°C 부근의 온도에서 급랭시험 시 파손된 피복관의 ECR 값은 30% 이상의 높은 값을 나타내었다. 따라서 본 시험프로그램 결과를 통하여 17% ECR 안전기준이 보수적인 기준임을 확인할 수 있었다.

(나) JAERI tests

일본의 JAERI에서도 ANL 시험프로그램과 같이 알루미늄(Al₂O₃) 펠렛을 장입한 미조사 Zircaloy-4 핵연료봉에 대한 종합시험(integral tests)이 1980년대 초기에 수행되었다. 피복관은 수증기 분위기의 전기로에서 가열되었으며, 본 시험프로그램의 결과를 통해 급랭시험 시 파손된 피복관의 ECR 값은 27-30% 정도의 높은 값을 갖는 것으로 평가되었다. 따라서 본 시험 역시 17% ECR 안전기준이 보수적인 안전규제

기준임을 확인할 수 있게 해준 시험프로그램이었다.

2.4 LOCA 안전규제기준에 대한 최근 연구 현황

(가) 피복관 취화에 미치는 중성자 조사영향(irradiation effects) : in-pile 영향
10CFR50.46 안전규제기준의 근간이 된 실험 자료들은 모두 미조사 피복관 재료에 대한 자료였기 때문에 1204°C PCT 안전기준 및 17% ECR 안전기준이 중성자 조사(irradiation) 환경인 실제 원자로 운전조건 하에서도 적용가능한지에 대한 연구가 몇몇 기관에서 진행되었다. 피복관 재료가 중성자 조사를 받게되면 다음과 같은 미세조직의 변화를 수반하게 된다.

○ 중성자 조사결함(irradiation defects) 생성 :

점결함(point defects) 및 전위 루우프(dislocation loops)와 같은 중성자 조사결함이 발생되며 이러한 미세조직의 변화는 피복관의 취화를 가져올 수 있다.

○ 원자로내 정상운전중의 냉각수산화에 의한 수소침투(hydrogen pick-up) 및 이에 따른 수소화물 생성 :

low-tin Zircaloy-4의 경우 60,000 MWd/tU 연소도에서 수소침투량이 평균적으로 약 600 ppm 정도로 관찰되며 이 정도 양의 수소침투는 피복관 재료의 연성에 심각한 악영향을 줄 수 있는 것으로 알려져 있다.

○ 정상운전조건 하에서의 냉각수산화(waterside corrosion) :

60,000 MWd/tU의 연소도에서 정상운전조건 하에서의 냉각수산화에 의해 약 60-100 μ m의 산화막이 생성된다. 따라서 실제 원자로에서 LOCA 사고시의 고온 수증기산화 거동에서 산화반응의 kinetic 거동에 영향을 줄 수 있으며 또한 고온 수증기 산화반응 전에 이미 ECR이 17%에 근접할 수도 있게 되어 ECR margin에 대한 중요한 변수가 될 수 있다.

(나) JAERI(Japan) LOCA 시험프로그램

일본 JAERI에서는 1998년에서 2000년까지는 미조사된 as-fabricated 피복관 및 수소를 장입한(pre-hydrated) 피복관에 대한 실험을 통하여 수소침투 영향을 평가하였으며, 2001년에서 2003년까지 조사된 핵연료 피복관을 대상으로 실험을 수행하여 미조사 핵연료 피복관 및 조사 핵연료 피복관의 거동을 비교, 평가함으로써 중성자 조사영향을 연구하고 있다. 본 시험프로그램은 핫셀내에서의 종합시험이 가능하여 피복관 파열실험, 고온수증기 산화실험 및 피복관의 기계적특성 평가 실험 등을 수행하고 있다.

(다) EDF-CEA(France) LOCA 시험프로그램

본 시험프로그램은 미조사된 피복관, as-fabricated 피복관, 산화막을 기 형성시킨

(pre-oxidized) 피복관 그리고 수소침투를 시킨(pre-hydrated) 피복관에 대한 실험을 통하여 정상상태에서의 산화막 및 수소침투 영향을 평가하였으며, 65,000 MWd/tU 연소도까지 연소된 핵연료 피복관을 대상으로 실험을 수행하여 중성자 조사영향까지 평가하고 있다. 1991년부터 1999년까지 수행된 프랑스 LOCA 시험프로그램에는 피복관 파열실험, 고온수증기 산화실험 및 급랭시의 열충격(thermal shock) 평가실험 등이 포함되어 있다.

프랑스 LOCA 시험 프로그램은 네 개의 시험 프로그램으로 이루어져 있는데 그 시험 프로그램은 각기 다른 목적을 가지고 있으며 모든 시험은 수증기 분위기에서의 17×17 Zircaloy-4 피복관의 양면산화(double-sided oxidation) 및 급랭시의 열충격 시험(thermal shock test)이 포함되어 있다.

○ TAGCIS 시험프로그램 (1991~1993) :

as-fabricated Zircaloy-4 및 pre-oxidized Zircaloy-4 피복관에 대한 110개 이상의 열충격시험 자료를 생산하였고 고연소 핵연료봉의 수명말기 부식거동과 유사한 초기부식을 나타내는 미조사 피복관의 열충격 거동을 조사하는 것이 본 시험 프로그램의 목적이었다. 산화막의 두께는 60 μ m에서 120 μ m 범위였다.

○ TAGCIR 시험프로그램 (1993~1996) :

본 시험프로그램으로부터 EDF 상업용 원자로에서 5주기 동안 약 60,000~63,000 MWd/tU의 연소도를 갖는 고연소도 핵연료봉으로부터 채취한 Zircaloy-4 시편에 대한 25개의 산화실험 및 열충격시험 자료가 생산되었다.

○ HYDRAZIR 시험 프로그램 (1996~1999) :

미조사된 as-fabricated Zircaloy-4 및 pre-hydrated Zircaloy-4 피복관에 대한 산화실험 및 열충격시험이 수행되는 프로그램으로서 수소침투량이 최고 5,000 ppm까지 인 시편들에 대한 수소침투 영향을 평가하는 시험 프로그램이다. 본 시험 프로그램의 주요 목적중의 하나가 바로 원자로 정상운전중의 피복관내 수소침투가 LOCA 사고시의 고온 수증기 산화 및 ECCS에 의한 급랭에 미치는 영향을 평가하는 것이었다. 이러한 수소영향 평가에 대한 관심은 본 시험 프로그램이 진행되기 전 TAGCIR 시험프로그램에서의 결과로부터 비롯되었다. 당시 시험프로그램의 경우 조사 피복관에 대한 급랭에 의한 열충격시험이 포함되었는데 LOCA 조건하에서의 조사된 핵연료봉의 거동이 피복관내 수소침투량과 관련이 있을 수 있음을 밝힌 바 있다.

○ CINOG 시험프로그램 (1997~2000) :

as-fabricated Zircaloy-4 시편에 대한 산화실험 및 열충격시험이 수행되는 프로그램으로서 본 시험 프로그램의 특징은 최근에 고연소도용으로 개발된 핵연료 피복관이나 혹은 앞으로 개발될 신합금 피복관에 대한 LOCA 조건하에서의 허가기준(licensing criteria)에 관한 연구에 초점이 맞추어진 프로그램이라고 할 수 있다.

위의 TAGCIR 시험프로그램에서는 ECR 값을 평가할 때 피복관 단면의 각각의 상(phase)의 두께를 측정하고 피복관 내부의 총 산소량을 계산함으로써 평가하였으나 그 이후의 시험프로그램인 HYDRAZIR 및 CINOG 시험 프로그램에서는 고온 수증기 산화반응에 따른 피복관의 무게증가(weight gain)를 측정하는 kinetic 자료를 이용하여 ECR이 평가되었다.

(라) 중성자조사에 의한 미세구조 변화가 LOCA 거동에 미치는 영향

TAGCIR 시험 프로그램의 결과에 의하면 미조사된 피복관과 조사된 피복관과의 급랭거동에 있어서 차이가 없는 것으로 나타났다. 이는 LOCA시 600°C 이상의 온도 및 300-500초 동안 피복관 연성과 같은 기계적 성질에 영향을 줄 수 있는 점결함이나 전위 루우프같은 조사손상이 annealing에 의해 완전히 소멸되기 때문인 것으로 설명하였다. 또한 수증기산화 온도에서는 Zr이 α 상에서 β 상으로 동소변태(allotropic transformation)하게 되는데 이러한 상변태가 annealing에 의한 조사손상의 소멸에 긍정적인 역할을 한다고 풀이하였다. 추가적으로 고온에서 수소화물의 급속한 재분포(redistribution)도 확산(diffusion)과정에 의해 지배받고 이러한 확산과정은 고온에서 더 빠르므로 조사손상 소멸에 기여하는 것으로 평가하였다.

(마) 정상가동중의 피복관내 수소침투가 LOCA 거동에 미치는 영향

일본의 Nagase와 Uetsuka[3]는 고온에서 피복관내의 수소가 매우 빠른 속도로 재분포 한다는 것을 실험적으로 밝혔는데 수소를 침투시킨 피복관 시편을 대상으로 한 실험에서 피복관내의 수소가 완전히 재분포하는데 1초도 안 걸릴 정도로 빠르게 재분포한다는 것을 보여주었다. Nagase와 Uetsuka의 연구결과 및 프랑스의 연구결과에 의하면 고온 수증기산화 반응속도에 미치는 수소의 영향은 미미했으며 모든 실험에서 이러한 영향은 10-20% 미만이었다. 따라서 10CFR50.46 안전기준의 ECR 평가시 권고되고 있는 Baker-Just 산화모델이 상당히 보수적인 것으로 알려져 있으므로 이러한 고온 수증기산화 반응속도에 미치는 수소의 영향을 충분히 보상할 수 있는 것으로 주장하였다. 실제로 LOCA 조건하에서, 즉 1200°C 미만의 온도에서 수분간 수증기 산화반응이 진행될 경우에 정상운전 중 800 ppm의 수소침투량을 가진 전형적인 피복관의 경우 전혀 이러한 산화반응 가속화가 관찰되지 않았다. 또한, 정상운전 중에 침투된 수소는 피복관의 급랭거동에도 두드러진 영향을 미치지 않는 것으로 나타났다. 프랑스에서 수행된 수소장입 피복관(HYDRAZIR) 및 조사된 피복관(TAGCIR)에 대한 시험프로그램에서도 as-fabricated 피복관에 대한 시험프로그램(HYDRAZIR와 CINOG)과 비교했을 때 급랭에 대한 저항성 또는 급랭전의 서냉(slow cooling)에 대한 저항성에 별 차이가 없음을 확인한 바 있다. 결국 정상운전중의 수소침투는 어느 한도까지는 LOCA 조건하에서 전체적인 핵연료 피복관의 거동에 큰 영향이 없는 것으로 간주하였다.

(바) 정상가동중의 피복관 냉각수 산화가 LOCA 거동에 미치는 영향

본 영향을 평가하기 위해 위에서 언급되었듯이 TAGCIS 시험프로그램이 1990년대 초에 수행되었다. 112개의 피복관 내외면 양면산화 및 열충격시험이 4종의 피복관 시편에 대하여 수행되었다.

- As-fabricated Zircaloy-4 피복관 시편(두께 : 570 μ m)
- 노외에서의 pre-oxidized Zircaloy-4 피복관 시편(산화막 두께 : 50-85 μ m)
- 얇게 처리한 Zircaloy-4 피복관 시편(두께 : 525 μ m, 370 μ m), 525 μ m는 ECR에 의한 피복관 두께 손실분을 모사하기 위한 것이고 370 μ m는 ballooning에 의한 피복관 두께 감소를 모사하기 위한 것이다.
- 얇게 처리된 pre-hydrided Zircaloy-4 피복관 시편(두께 : 525 μ m, 수소침투량 500-1000 ppm)

모든 시편에 대한 파손시의 ECR 값은 비슷한 값을 가졌으며 이러한 결과는 정상운전중에 형성된 산화막 또는 ballooning에 의한 피복관 두께감소가 LOCA 조건하에서 핵연료 피복관의 거동에 큰 영향이 없음을 보여준다. 그러나 초기 연구의 결과는 실험상의 한계로 인해 많은 편차가 있었으며 고온 수증기산화반응을 위한 가열시 유도코일(induction coil)의 감겨있는 부분과 그렇지 않은 부분사이의 온도차이로 인해 피복관 길이방향으로 불균일한 온도분포를 보일 수 밖에 없었고, 따라서 피복관의 국부적인 온도측정이 요구되었다. 이러한 모든 실험상의 한계가 그 후의 시험프로그램인 TAGCIR, HYDRAZIR, CINOG 시험프로그램에서는 보완이 되었다.

TAGCIR 시험프로그램은 정상운전중의 산화막이 파손시의 ECR에 별다른 영향을 미치지 않는다는 TAGCIS 프로그램의 결과를 뒷받침 해주었다. 1973년 Rule-Making Hearing 이후부터 1990년대까지의 모든 시험프로그램들, 즉 1970년대의 ANL 시험프로그램, 1980년대의 JAERI 시험프로그램, 1990년대의 TAGCIR, HYDRAZIR 및 CINOG 시험프로그램 결과는 정상가동중의 피복관 냉각수 산화가 LOCA 거동에 미치는 영향 측면에서 거의 동일하였다. 즉, 시편의 조건, 중성자 조사 여부, pre-oxidized 시편 혹은 미산화 시편 여부, pre-hydrided 시편 혹은 수소침투가 되지 않은 시편 여부에 관계없이 파손시의 ECR 값은 약 28-30%로 비슷한 결과를 나타내었다. 결론적으로 위의 모든 시험프로그램에서 정상운전중에 형성된 피복관 산화는 LOCA 조건하에서의 핵연료 피복관 거동에 거의 영향을 미치지 않는 것으로 평가되었다.

2.5 LOCA 안전규제기준에 대한 현재 진행중인 시험프로그램 현황

(가) ANL 연성평가 시험프로그램

US NRC에서 현재 고려하고 있는 피복관 연성 평가를 위한 기계적 시험방법으로는 그림 1에 나타난 것처럼 ring compression test, three point bend test 및 four point bend test가 있는데 본 시험프로그램에는 Zircaloy-2, Zircaloy-4, E110, M5 및 ZIRLO 피복관이 사용될 예정으로 있고, Zircaloy-2, Zircaloy-4, E110, M5 피복관은 현재 확보하여 Argonne National Laboratories(ANL)에서 실험을 준비중이며 ZIRLO 피복관의 확보를 위해 현재 Westinghouse사와 협의 중에 있다. 본 시험프로그램은 NRC 주관하에 Electric Power Research Institute(EPRI), Framatome ANP 그리고 Department of Energy(DOE)의 협조를 받아서 실제 실험은 ANL에서 수행될 예정이다.

Ring compression test의 경우 실험이 간편하고 비용이 적게 드는 장점이 있으며 LOCA 취화 기준의 토대가 되었던 시험이었기 때문에 안전성 규제지침을 위한 시험방법으로서 고려대상이 되었다. Three point bend test는 ring compression test에 비해 비용이 많이 들기는 하나 몇 가지 장점을 가지고 있는데 그 중의 하나는 인장하중(tensile load)이 원주방향(circumferential direction) 보다는 길이방향(axial direction)으로 작용한다는 점이다. 이러한 점은 지진이라든가 발전소 진동 및 핵연료 피복관 지지격자와의 상호작용 등으로부터 야기될 수 있는 응력을 더욱 더 잘 모사할 수 있다는 장점이 있다. 게다가 본 시험으로부터 얻어지는 하중 대 변형(deflection) 곡선은 간단하면서도 해석이 쉽다는 장점이 있다. 그러나 만일 three point bend test와 ring compression test에서 같은 재질 및 같은 조건의 피복관에 대해 파손시의 ECR이 같다면 피복관 연성 평가방법으로서 비용이 적게드는 ring compression test를 채택하는 것을 계획하고 있다.

Four point bend test도 본 ANL 시험프로그램에서 수행될 예정인데 LOCA 모사시험에 의해 ballooning 및 파열부(burst opening)를 포함한 시편을 가지고 시험을 하게 된다. 이 시험방법은 피복관 시편 내부에 핵연료 펠렛을 포함하게 되며 LOCA 사고 시 핵연료 피복관의 ballooning이 일어난 부분의 거동을 연구하는데 가장 적합한 시험방법이라 할 수 있다. 그 이유는 파열부를 통해 수증기가 유입되고 따라서 피복관 내면에도 산화반응이 진행되므로 결국 양면산화(double-sided oxidation)가 이루어지고 내면산화에 의해 파열부 주변에 다량의 수소침투가 진행되게 되므로 실제 상황을 가장 잘 모사할 수 있기 때문이다. 시험시 하중을 가하는 지점은 ballooning에 의한 변형이 일어난 부위와 멀리 떨어진 곳이며 피복관 시편은 가장 취약한 부위에서 자연적으로 파손이 발생하게 된다. 그러나 LOCA 사고시 핵연료 피복관의 거동을 가장 잘 모사할 수 있다는 장점에도 불구하고 비용이 많이 드는 관계로 본 시험은 다른 평가시험방법에 대한 확인용으로만 활용될 계획이다.

본 시험프로그램에서는 우선 미조사 핵연료 피복관 및 as-fabricated 피복관에 대해

실험이 수행될 예정이며 후에 고연소도 영향을 평가하기 위하여 조사 핵연료 피복관과 수소침투 시킨 피복관을 대상으로 연구가 진행될 예정으로 있다.

(나) ANL 종합시험프로그램 (integral test program)

ANL에서는 위에서 언급한 연성평가 시험프로그램 외에 LOCA 사고시 핵연료 피복관의 안전관련 허가기준을 평가하기 위한 자료를 제공하기 위해 BWR 및 PWR 고연소도 핵연료를 대상으로 하는 시험프로그램을 수행하고 있다. LOCA 종합시험장비(integral test apparatus)가 핫셀 외부에 설치되어 지르코니아 펠렛을 장입한 Zircaloy-2 시편에 대한 실험이 수행되고 있다. GE-11 9×9로 설계된 BWR용 Zr-lined Zircaloy-2인 Limerick 피복관이 시험에 사용되었는데 연소도는 약 57,000 MWd/tU 정도였고 피복관 외면 및 내면의 산화막 두께는 각각 10 μ m 및 10-15 μ m였다.

또한 두 번째 시험장비가 핫셀내에 설치되어 두 시험장비가 실험기기 및 제어시스템 등을 공유하게 되며 산화반응에 대한 kinetic 실험 및 LOCA 종합시험을 수행할 수 있도록 되어있다.

LOCA 종합시험의 첫 번째 프로그램은 아래와 같으며 그림 2에 나타내었다.

- 1단계 : 상온 및 300 $^{\circ}$ C에서의 피복관내 가압(pressurization)
- 2단계 : 피복관 파열시험(burst test)
- 3단계 : 피복관 1204 $^{\circ}$ C 수증기 산화실험(steam oxidation)
- 4단계 : 피복관 급랭시험(quenching)

본 시험프로그램은 현재 시작 단계이며 다양한 시험이 수행될 예정으로 있다.

(다) 러시아 Kurchatov Institute 시험프로그램

최근에 고연소도용으로 개발되었거나 혹은 개발중인 피복관은 모두 Nb를 함유하는 것을 특징으로 하고 있으므로 ZIRLO, M5, E110, E635 등과 같은 Nb 함유 피복관을 대상으로 하는 LOCA 관련 연구가 새로운 이슈로 떠오르고 있다. 특히, 1990년대 독일에서 수행된 기계적 특성 평가시험에서 Zircaloy-4와 Nb를 함유한 E110(Zr-1%Nb)의 거동에 큰 차이가 있음이 확인되었다. E110 피복관의 경우 150-200 ppm 이상의 수소가 존재할 경우 피복관 연성에 심각한 연성저하를 가져오는 것으로 평가되었다. 그러나 프랑스에서 수행된 Zircaloy-4와 M5(Zr-1%Nb) 피복관과의 비교 실험에서는 별다른 거동의 차이가 나타나지 않았다.

현재 Nb 함유 피복관과 LOCA 안전규제 기준을 적용 받아오던 Zircaloy-4와의 기계적 특성, 수증기산화 거동 및 피복관내의 수소취화 거동 등의 차이가 명확히 규

명되어 있지 않다. 따라서 이러한 Nb 함유 피복관에 대한 LOCA 사고시의 정확한 거동평가의 필요성이 대두되고 있다. 최근에는 러시아의 Kurchatov Institute에서 LOCA와 관련하여 피복관 연성평가에 대한 연구가 E110 피복관을 사용하여 진행되고 있다. 그림 3(a)에 20°C 및 135°C에서의 ring-compression 시험결과를 나타내었는데, 잔류연성(residual ductility)은 ECR 값이 증가함에 따라 감소하였으며 20°C에서의 zero ductility threshold는 약 8.3% ECR이었으며 135°C에서의 zero ductility threshold는 약 10.3% ECR로 평가되었다. 그림 3(b)는 약 50,000 MWd/tU의 연소도를 갖는 VVER-type E110 고연소 핵연료의 20°C ring-compression 시험결과이며 zero ductility threshold가 약 8% ECR로 평가되었다.

3. LOCA 안전규제기준 분석

최근에 LOCA 안전규제기준에 대한 재평가가 이루어지고 있으며 이는 1973 Rule-Making Hearing에서 규정된 LOCA 안전규제기준이 최근의 고연소도 핵연료의 경우에도 적용 가능한지에 대한 의문에서 비롯되었다. 이에 대한 최근에 부각되고 있는 이슈를 정리하면 다음과 같다.

(가) 정상가동중의 냉각수 산화에 의해 형성된 산화막을 ECR 계산에 넣어야 하는지에 대한 여부이다. 이에 대해서는 국제적으로 통일된 기준 없이 각 국가별로 적용하고 있는 실정이다. 기존의 33,000 MWd/tU 혹은 40,000 MWd/tU 정도의 연소도에서는 정상운전중의 냉각수산화에 의한 산화막이 20-40 μ m 정도였으므로 피복관 두께 손실측면에서 큰 문제점이 되지 않았으나 최근의 고연소도, 즉 60,000 MWd/tU 이상의 연소도에서는 정상운전중의 산화막이 최고 100 μ m 이상이 될 수도 있음이 보고되고 있다. 피복관 두께를 625 μ m라고 보면 100 μ m의 산화막은 ZrO₂ 산화막의 Pilling-Bedworth ratio를 1.56으로 감안했을 때 LOCA 사고가 발생하기 전 이미 ECR 값이 10%가 훨씬 초과된 상태이고 따라서 LOCA 사고가 발생하게 되면 고온 수증기산화에 의한 ECR margin 값이 7% 미만 밖에 되지 않는다.

더구나 최근의 고연소도용으로 개발되었거나 개발중인 핵연료 피복관은 그 두께가 기존의 Zircaloy-4에 비해 얇아지는 추세에 있고 Westinghouse사에서 개발되어 현재 고연소도용으로 사용되고 있는 ZIRLO™ 피복관의 경우 공칭 두께가 570 μ m 이므로 실제 ECR 값은 정상운전중의 산화막의 두께가 동일할 경우에도 실제 ECR 값은 이미 기존의 Zircaloy-4보다 높게 평가되고, 따라서 ECR margin 값은 훨씬 더 줄어들게 될 것이다. 따라서 연소도가 점점 더 증가할수록 ECR margin은 훨씬 더 줄어들게 될 것이고 산화막 두께가 어느 정도 이상이 되면 LOCA 사고가 발생하기 전 이미 17% ECR 안전 규제기준을 초과할 수도 있게 된다.

(나) 급랭시 피복관 연성에 미치는 피복관내 수소의 영향

정상운전중의 수소침투 문제 또한 최근의 주요 이슈로 자리잡아 피복관의 연성에 미치는 수소의 영향평가가 활발히 진행되고 있다. 고연소도 핵연료의 경우 정상운전중의 산화막 두께가 급격히 증가하는 만큼 이에 따른 피복관내로의 수소침투도 급격히 증가하게 되므로 피복관의 연성에 미치는 수소의 영향평가가 필수적이다. 피복관내로 수소가 침투하게 되면 피복관 재료의 연성이 급격히 감소하여 취화 (embrittlement)되게 되는데 피복관내 수소의 양이 어떤 critical 값 이상이 되면 급격히 연성이 저하가 되므로 이러한 critical 값에 대한 실험 자료가 요구된다.

1973년 Rule-Making Hearing에서 규정된 안전규제기준은 피복관의 산화에 의한 취화만을 고려하였고 수소취화에 의한 피복관 연성저하는 전혀 반영되지 않았다. LOCA 사고시 피복관 파열부(burst opening) 주위에 수소가 집중된다는 사실에 주목하면 이 부위는 수소취화로 인하여 상대적으로 다른 부위보다 더 취화되게 되므로 17% ECR 안전 규제기준이 re-flood에 의한 급랭시에 피복관의 기계적 건전성을 보장해줄 수 있을지는 미지수가 된다.

실제로 1980년대 초에 미국의 ANL 및 일본의 JAERI에서 수행된 연구는 약 600-700 ppm의 피복관내 수소침투량은 피복관의 수소취화를 야기시킬 수 있는 것으로 결론지었으며 이는 1973년 Rule-Making Hearing 이후 새롭게 발견된 사실중의 하나였다.

(다) Niobium 함유 고연소도용 핵연료 피복관의 적용 타당성

핵연료의 고연소도 추세에 따라 기존의 40,000 MWd/tU 까지 사용해오던 Zircaloy-4 혹은 low-tin Zircaloy-4는 냉각수 산화에 의한 피복관 부식문제로 인하여 사용상의 한계에 부딪치게 되었고 새로운 부식저항성이 큰 신합금 핵연료 피복관을 개발해왔다. Westinghouse사에서 개발된 ZIRLO™ 피복관, 프랑스의 M5 피복관, 러시아의 E635 피복관 등이 바로 그 예이고 이들 고연소도 피복관은 Nb이 부식 저항성을 향상시키는 것으로 밝혀져 모두 Nb을 함유하고 있다는 것이 공통적인 특징이다.

기존의 10CFR50.46에 규정되어 있는 안전 규제기준이 Zircaloy-2 및 Zircaloy-4에 대해서는 적용이 가능하지만 Nb을 함유하고 있는 위의 고연소용 피복관과 현재 개발중이거나 혹은 앞으로 개발될 예정인 피복관에도 기존의 안전 규제기준이 적용가능한지는 미지수이다.

(라) 고압 수증기 분위기하에서의 산화 가속화

17% ECR 안전규제기준은 Baker-Just kinetic model을 사용한 계산값에 근거를 두고 있고 Baker-Just 고온 수증기산화 모델은 1기압 수증기 조건하에서 도출된 모델이었다. 그러나 실제 LOCA 사고시에는 large break 혹은 small break 이냐에 따라 다르겠지만 경수로 원자로 시스템 압력인 150 기압보다는 낮더라도 수십 기압의 압력 조건일 것으로 추측되며 결국 1기압 수증기와의 산화반응이 아닌 수십 기압의 압력을 가지는 고압 수증기와의 산화반응이 진행되게 된다. 따라서 동일한 온도에서 동일한 시간동안 수증기 산화반응이 진행되더라도 반응속도에 따라 실제 ECR 값은 다르게 나타날 수 있다. 그러므로 정확한 ECR 값을 평가하기 위해서는 정확한 수증기산화 반응속도를 계산하는 것이 필수적인데 최근의 고온/고압 수증기 산화반응실험은 고압의 수증기 분위기에서 산화반응이 가속화됨을 보여주고 있다.

프랑스 IRSN의 Hache[4]는 Zircaloy-4와 E110 피복관을 사용하여 750°C 및 850°C에서 최고 150 bar(150 기압) 까지의 여러 연구자들의 수증기 산화반응 자료를 취합하여 수증기 압력영향을 평가하였다. 그림 4에서 볼 수 있듯이 Zircaloy-4의 경우 25-50 bar의 수증기 산화실험에서 산화반응속도의 가속화가 관찰되었으며 Baker-Just kinetic model에 의한 수증기 산화반응 제한치를 초과하였다. 이러한 수증기산화 반응속도에 미치는 압력영향은 750-800°C에서 최대로 나타났고 온도가 증가하면서 이러한 압력영향이 줄어드는 것으로 나타났다. 따라서 Zircaloy-4 피복관의 경우는 intermediate LOCA 사고 시에 실제적인 안전문제는 없는 것으로 결론되었으나 이러한 압력영향의 정확한 평가를 위해서는 좀 더 많은 실험이 추가적으로 요구되고 있다.

E110 피복관의 경우는 750°C에서 Zircaloy-4 피복관보다 압력영향이 적은 것으로 나타났으나 850°C에서는 40 bar의 수증기 분위기하에서 급격한 산화 가속화가 관찰되었고 이 경우 ballooning에 의한 피복관 두께 감소가 없었음에도 불구하고 17% ECR 기준을 초과하였다. 고압수증기 산화의 가속화 현상은 고압의 수증기 분위기하에서 산화막이 tetragonal 결정구조에서 monoclinic 결정구조로의 상변태에 기인하는 것으로 설명하고 있으며 총 압력(total pressure) 보다는 수증기의 부분압력(partial pressure)에 기인하는 것으로 풀이하고 있다.

Monoclinic 산화막은 tetragonal 산화막보다 훨씬 다공성(porous)이고 균열(crack)을 많이 포함하며 따라서 비보호적(non-protective)인 것으로 알려져 있다. 그러므로 고압수증기에서의 산화반응은 가속화될 수 밖에 없다. 또한, 고압의 수증기는 산화막의 stoichiometry의 진행을 가속화시킨다고 설명하고 있다. 앞에서 언급하였듯이 고압의 수증기 산화가속화가 750-850°C에서 급격히 나타나다가 그 이상의 온도에서는 이러한 압력영향이 줄어들게 되는 것은 바로 monoclinic 산화막내의 기공과 균열 등이 고온에서의 annealing 효과에 의해 소멸되기 때문인 것으로 풀이된다.

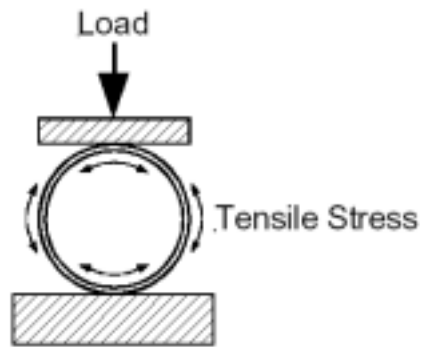
4. 결 론

1973년 LOCA 안전기준을 위한 Rule-Making Hearing 이후로 LOCA 안전기준에 대한 타당성 및 이에 대한 연구가 진행되어 왔고, 최근 들어 고연소도 핵연료에 대한 적용 여부 등에 관한 연구가 새롭게 국제적으로 추진되고 있다. 실제 LOCA 사고 시의 고연소도 핵연료피복관 거동을 재평가하며 현재 부각되고 있는 이슈를 아래와 같이 분석하였다.

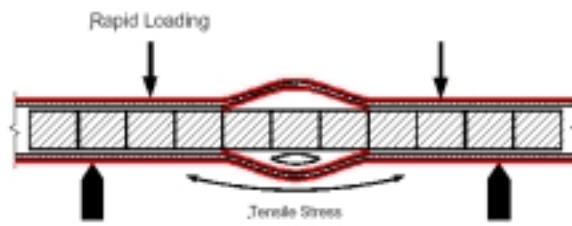
- 정상가동중의 냉각수 산화에 의해 형성된 산화량을 ECR 계산시 포함 여부
- 급랭시 피복관 연성에 미치는 피복관내 수소의 영향
- Niobium 함유 고연소도용 핵연료피복관의 기존 LOCA 안전기준 적용의 타당성
- 고압 수증기 분위기하에서의 산화 가속화

참고 문헌

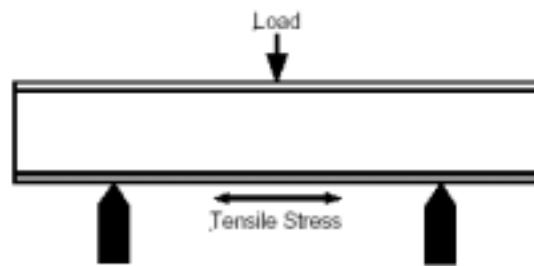
- [1] Hobson, *ORNL-4758* (1972)
- [2] Hobson, *Proceedings of International Topical Meeting On Water Reactor Safety, Salt Lake City, USA, March 26* (1973)
- [3] F. Nagase, H. Uetsuka, *Proceedings of International Topical Meeting on Fuel Performance, Portland, USA, March 2-6* (1997)
- [4] G. Hache, *Proceedings of Nuclear Safety Research Conference 2002, Washington D.C., USA, October 28-30* (2002)



(a)



(b)



(c)

그림 1. ANL시험 프로그램의 피복관 연성평가 시험 개략도

(a) ring compression test (b) three point bend test (c) four point bend test

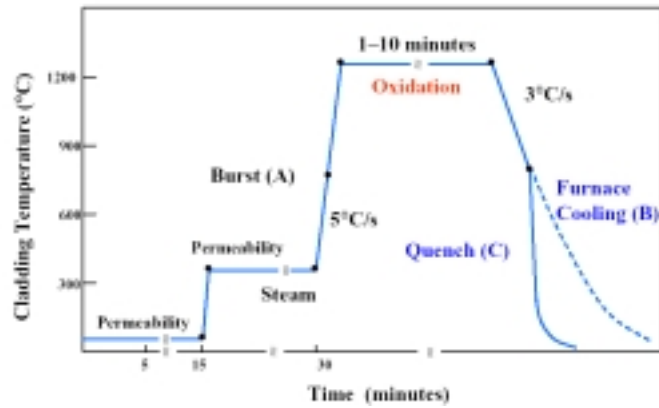
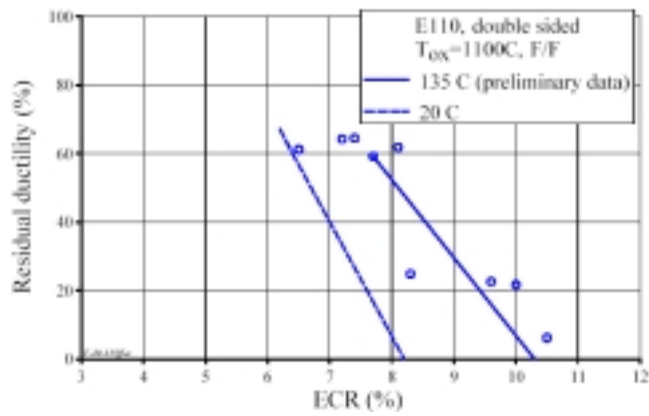
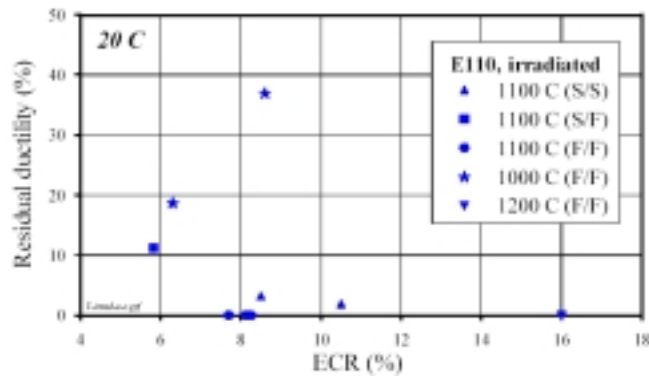


그림 2. ANL LOCA 종합시험(integral test) 프로그램의 sequence



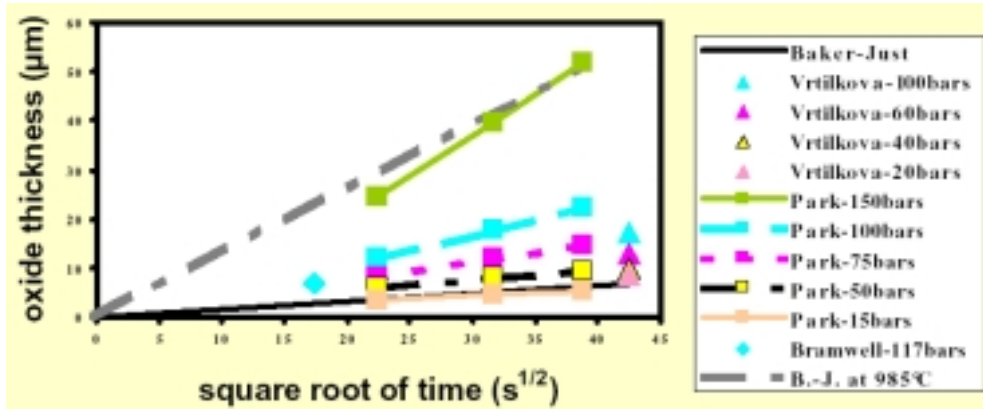
(a)



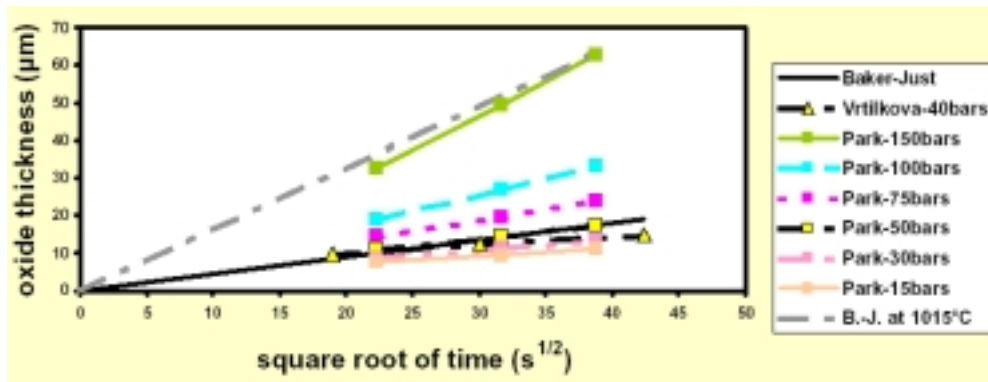
(b)

그림 3. ECR 증가에 따른 E110 피복관의 ring-compression residual ductility 변화

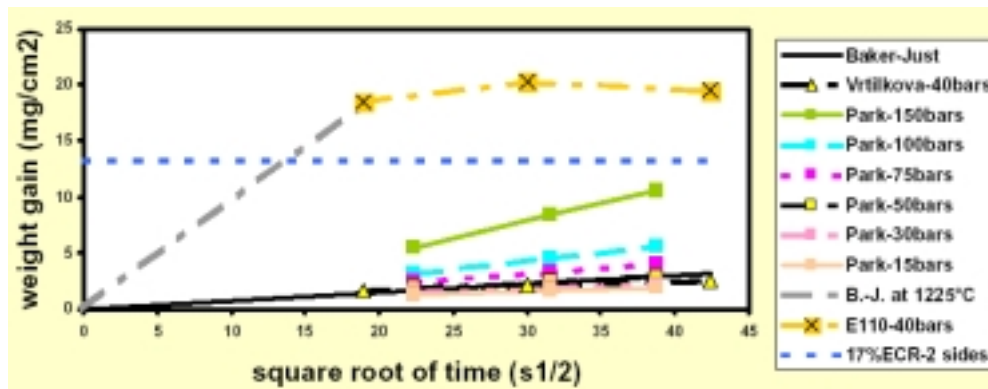
(a) 미조사 E110 피복관 (b) 조사 E110 피복관



(a)



(b)



(c)

그림 4. 고압수증기 산화반응에 따른 무게증가 거동
 (a) 750°C 산화 (b) 850°C 산화 (c) 850°C 산화 (E110 피복관 자료 포함)