2002 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

과도상태에서 공정반응에 의한 액체금속로 핵연료봉의 설계기준 평가

Estimation of Design Criteria for LMR Fuel Pin Related to Eutectic Penetration under Transient Conditions

권형문, 이동욱, 이병운, 김영일

한국원자력연구소
대전시 유성구 덕진동 150

요 약

과도상태 환경에서 액체금속로 핵연료봉의 주요한 파손기구는 공정반응에 의한 피복관 감육현상과 크리프변형이다. 고온이 될수록 공정반응층 침투율이 증가하고 동시에 원주응력이 증가하여 크리프에 의해 예상되는 파손시간 이전에 파손이 발생하게 된다. 이 연구의 목적은 공정반응층 두께 변화율에 미치는 연소도와 온도의 영향을 규명하고 크리프에 의한 설계기준값을 공정반응에 의한 것과 비교하여 과도상태일 때 공정반응이 연료봉 성능에 미치는 영향을 평가하는 것이다. 평가결과, 저연소도 연료봉은 공정반응이 크리프에 의한 파손 예상 시간을 크게 단축시키며 고연소도 연료봉은 고온으로 갈수록 공정반응 보다는 크리프에 의한 손상이 파손의 주요 요인인 것으로 나타났다.

Abstract

The major factors of the rupture behavior of LMR fuel pin seem to be the cladding hoop stress caused by fission-gas loading and the stress enhancement due to the eutectic penetration rate. If the temperature is raised above the threshold eutectic temperature of low-melting phase formed by fuel/cladding interaction, the pin fail under predicted rupture time by creep correlation because of wall thinning due to the eutectic penetration. The objects of this study are to determine the eutectic penetration rate affected by burnup and temperature and to compare the design criteria of creep with that of eutectic penetration. So it was estimated how the pin performance are analyzed by the eutectic penetration in this study. As the result of the estimation, the cladding seems to fail under predicted rupture time by creep in case of low burnup fuel and the cladding damage of creep seems to be more principle than eutectic as the temperature increases in case of high burnup fuel.

1. 서론

미국 알곤연구소(ANL)를 중심으로 1984년 이후 IFR(Integral Fast Reactor) 개념의 새로운 액체금속로 개발이 시작되었고 액체금속로 연료봉의 형태는 삼원합금연료 형태인 U-Pu-Zr 연료심과 HT9 피복관이 개발되어 왔다[1]. 현재 한국원자력연구소에서는 액체금속로인 KALIMER(Korea Advanced LIquid MEtal Reactor)가 개발중에 있으며 U-TRU-Zr 연료/HT9 피복관을 연료봉 제원으로 잠정 설정해 놓고 있다.

EBR-II에서 수행된 광범위한 조사실험 결과, U-Pu-Zr 삼원합금연료심, 75%의 희석밀도, 저팽윤 마텐사이트(martensite)강 피복관, 초기 연료심/피복관간 소듐접합, 1.5 플레넘/연료심 부피율에서 연소도 19at.%까지 성공적으로 달성되었다[2].

금속연료는 정상상태 뿐만 아니라 과도상태에서도 안전성을 보장할 수 있는 좋은 반응도 궤환효과와 높은 열전도도 특성을 갖고 있다. 이런 특징 때문에 원자로 정지계통이 작동하지 않는 ATWS(Anticipated Transient Without Scram)의 경우에도 노심의 반경방향 팽창, 연료심의 축방향 팽창 등의 반응도 궤환효과에 의해서 수십초에서 수시간내에 원자로 출력이 평형상태에 이르고 시스템은 안정상태에 도달하게 된다[3].

과도상태에서 액체금속로 핵연료봉의 주요 파손기구는 크리프변형과 공정반응이다. 특히 유량상실사고 또는 과도과출력사고가 발생하게 되면 연료심의 급격한 온도상승을 동반하게 된다. 이 때문에 봉내압이 증가하게 되고 연료심에 있던 란타나이드 핵분열 핵종이 피복관으로 침투하면서 피복관 강도를 감소시키는 공정반응층이 형성되게 된다. 공정반응층에 의해 피복관 두께는 감소하고 원주응력은 급격하게 증가하여 피복관의 손상은 가속되고 결국 파손시간은 단축된다. 또한 연료심과 피복관 상호확산에 의해 Uranium-iron 합금의 공융온도 문턱값을 넘게 되면 연료심-피복관 사이에서 액상(liquid phase)이 형성된다[4,5]. 공융온도 이하에서 공정반응층의 침투율은 거의 0에 이른다. 정상상태일 때는 액체금속로 운전조건이 공융온도 문턱값를 넘지 않으므로 공정반응에 의한 연료봉 손상은 미미하나 과도상태에 이르러 일단 공융온도 문턱값을 넘게 되면 피복관 감육이 시작되어 피복관 건전성에 상당한 영향을 미치게 된다.

과도상태의 크리프손상은 FCTT(Fuel Cladding Transient Tester)실험[6]에 의해 연구되었고 공정반응은 ANL(Argonne National Laboratory)에서 FBTA(Fuel Behavior Test Apparatus) 실험[7]에 의해 연구되었다. 또한 정지계통이 작동하지 않는 과도상태의 온도 조건과 유지시간을 고려한 WPF(Whole Pin Furnace) 실험[8]이 ANL에서 수행되었다.

핵연료봉의 피복관은 방사능 핵분열 핵종의 최전방 차폐 역할을 맡고 있다. 따라서 피복관의 손상을 최소화하기 위해서는 설계 한계치 설정에 있어서 충분한 공학적 안전 여유도를 확보하는 일이 매우 중요하다. 이 연구의 목적은 공정반응층 두께 변화율에 미치는 연소도와 온도의 영향을 규명하고 크리프에 의한 설계기준값을 공정반응에 의한 것과 비교하여 과도상태일 때 공정반응이 연료봉 성능에 미치는 영향을 평가하고 충분한 안전 여유도가 확보된 설계 한계치를 설정하는데 있다.

2. 공정반응에 의한 피복관 감육 현상

연소도가 증가함에 따라 연료의 구성원소와 핵분열 생성물인 란타나이드 핵종은 피복관으로 확산하여 low-melting phase를 형성한다. 이 영역은 'brittle zone'으로 피복관 손모(wastage)의 일부로 작용하여 피복관 감육 효과를 나타내게 된다[3]. 또한 과도상태의 경우 어떤 문턱값 온도를 넘게 되면 연료/피복관 경계지점에서 액상이 형성된다. Uranium-iron 시스템의 경우에 공융반응의 문턱값 온도는 715°C로 알려져 있다[9]. 이러한 현상을 결정짓는 대표적인 인자는 국부적인 연료/피복관 원소성분, 선형출력, 연소도, 피복관 온도이고 미세한 영향을 미치는 요인으로는 플레넘 압력, 핵분열 생성물, 소듐 본드, 연료의 porosity, 조사후 피복관 물성치의 변화와 그밖에 조사환경에서 발생하는 영향들을 들 수 있다[10]. 각각의 요인들을 정량화하려는 연구가 현재 수행되고 있으나 아직 명확한 정량화가 이루어지지는 않았다.

2.1 FBTA 실험[7]

이 실험은 U-19Pu-10Zr 금속연료와 HT9 피복관의 연료/피복관 양립성(compatibility)을 평가하기 위해 총 25개의 연료봉에 대해 수행되었다. 조사 연료봉의 표본은 EBR-II의 subassembly X441에서 조사된 연료봉이 사용되었다. 이 실험의 목적은 과도상태에서 연료/피복관 경계면에서 액상이 형성되는 문턱 온도를 결정하고 연소도와 실험 온도 그리고 온도 유지 시간에 따른 공정반응층의 피복관 침투율을 평가하는데 있다.

실험 결과, 고연소도 연료인 경우, 공정반응층은 보다 낮은 온도에서 형성되기 시작하지만 공정반응층 침투율의 활성화 에너지(activation energy)는 연소도가 5.6at.%인 연료에 비해 연소도가 11at.%인 연료가 더 낮은 것으로 나타났으며, 그림 1에서 보듯이 온도 유지시간이 증가할수록 공정반응층 침투율은 감소하였다. 또한 5.6 at.% 연소도의 연료봉인 경우, 1시간 실험일 때 공융온도 문턱값은 740°C ~ 770°C이고, 7시간일 때는 725°C, 11 at.% 연소도의 연료봉인 경우, 1시간 실험일 때 650°C, 12시간 실험일 때는 650°C ~ 660°C인 것으로 나타났다. 그림 2는 온도에 대한 공정반응층 침투율 실험값을 보여준다. 이 실험값은 실험 유지시간이 1시간인 경우이며 실선은 Cohen이 제시한 침투율 상관식이다. 식은 다음과 같다.

$$Penetration\ rate(mm/s) = \exp\left(11.646 - 15665/T(K)\right) \quad (1)$$

2.2 WPF 실험[3,8]

이 실험은 원자로 출력이 평형상태를 이루기까지 수십초에서 수시간에 이르는 사고상황에서의 연료봉 거동을 모의하기 위해 온도 이력에 따라 연료봉 외부에서 열을 가하여

수행되었고 실험에 사용된 연료봉은 EBR-Ⅱ에서 조사된 6개의 IFR 금속 연료봉이다. 그 중 저연소도(2.2, 3.0a/o)인 FM1~FM3 실험은 초기온도 500°C에서 6°C/s의 온도상승속도로 가열한 뒤 820°C 온도에서 유지하는 실험이고 고연소도(11.4 at.%)인 FM4 실험은 770°C까지 온도 상승후 유지하는 실험이었다. 이번 연구에서 공정반응의 영향을 보기위해 평가된 실험은 연료/피복관 유형이 U-19Pu-10Zr/HT9인 FM2와 FM4 실험이다. 두 실험을 선택한 이유는 FBTA 실험과 연료/피복관 유형이 같기 때문에 상관식에 의한 분석이 용이할 것으로 판단되기 때문이다. FM2와 FM4 실험의 중요 파라미터 및 실험결과는 다음 표와 같다.

2.3 연구 방법

공정반응 연구에서 우선 고려할 사항은 중요 인자인 연소도, 온도, 그리고 과도상태 경과시간에 따른 공정반응층 침투율의 변화 경향이다. 이런 경향을 정량화하고 실제적인 설계기준과 연계하여 검토하는 것이 이 연구의 목적이다.

하지만 공정반응층 침투율에 영향을 주는 중요 인자들에 대한 연구가 충분하지 않아 실험 데이터 역시 부족하기 때문에 우선은 공정반응에 대한 보수성을 얼마큼 부여할 것인가가 현재로서는 중요한 문제이다.

이번 연구에서는 FBTA 실험값을 사용하여 저연소도 및 고연소도에 대한 상관식을 유도하고 WPF 실험인 저연소도 FM2 실험과 고연소도 FM4 실험 조건과 관련, 크리프와 유도된 식을 사용한 공정반응의 영향을 비교하여 과도상태에서 공정반응이 연료봉 성능에 미치는 영향을 평가하였다. 크리프분석은 CDF(Cumulative Damage Fraction) 평가방법에 의해 수행하였고 과도 크리프 상관식은 FCTT 상관식을 사용하였다.

3. 결과 및 토의

먼저, FBTA 실험 데이터중 실험시간이 1시간인 데이터를 사용하여 중(medium)연소도와 고연소도에 대한 공정반응층 침투율 상관식을 유도하였다. 1시간 데이터를 선택한 이유는 ATWS의 경우 사고유지 시간이 수십초에서 수시간 정도이기 때문이다. 유지시간이 증가함에 따라 공정반응층 침투율은 감소하는 경향을 보이기 때문에 상관식에 의해 선형적으로 계산된 공정반응층 두께는 1시간 이후 실제값에 비해 보수성을 갖게 된다. 그림 3은 FBTA 실험값과 유도된 상관식을 나타낸다. 각 상관식은 그래프상에서 데이터를 선형식으로 회귀한 다음 기울기값에 해당하는 활성화 에너지값은 고정하고 가장 보수적인 데이터값을 대입하여 나머지 상수를 유도하는 방법으로 구하였다. 각 상관식은 다음과 같다.

$$Penetration\ rate(mm/s) = \exp\left(2.7371 - 6393.24/T(K)\right) \quad \text{for 5.0~5.6 at.\% burnup}$$
$$Penetration\ rate(mm/s) = \exp\left(21.5244 - 26706.45/T(K)\right) \quad \text{for 9.2~11.3 at.\% burnup} \qquad (2)$$

그림 3을 보면 연소도가 증가할수록 활성화 에너지가 감소하여 그래프상의 기울기가 줄어드는 것을 알 수 있다. 이런 영향 때문에 고온으로 갈수록 저연소도의 공정반응층 침투율이 현저하게 증가하여 고연소도의 침투율을 넘어서게 된다. 이는 연소도가 증가할수록 피복관으로 확산 가능한 란타나이드 핵분열 생성물이 많아지는 점과 연료심과 피복관 경계면에서 생성된 기체 버블(gas bubble)과 precipitate를 이루는 핵분열 생성물이 확산을 억제하는 것 사이의 상호 관련성에 기인한 것으로 여겨진다.

FM2와 FM4의 공정반응층 침투율은 두 상관식의 계산값에 비해 모두 낮은 값을 나타냈다. 하지만 750°C 이상 온도에서는 Cohen이 제시한 상관식이 더 보수적인 값을 보여주었다.

KALIMER 핵연료봉에 대한, 공정반응에 의한 피복관 두께 감육의 설계 한계치는 10%로 설정되어 있다. 그림 4, 5는 각각 FM2와 FM4 정상상태 조건하에서 10% 손모율 한계치, 크리프 그리고 공정반응에 의한 피복관 감육을 고려한 크리프의 파소시간을 온도별로 비교한 그림이다. 저연소도인 FM2 정상상태 조건에 의하면 공정반응은 크리프에 의한 파손 예상 시간을 크게 단축시키는 것을 알 수 있다. 고연소도인 FM4의 경우에는 고온으로 갈수록 공정반응 보다는 크리프에 의한 손상이 파손의 더 큰 요인임을 알 수 있다. 그림 5에서 700°C 부근의 공정반응층 침투율은 보수성이 매우 큰 것으로 보인다. 이는 고연소도 상관식의 유도 과정에서 온도변화에 따른 연료심/피복관 및 그 경계면에서의 상(phase)변화을 고려하지 않고 그로 인한 활성화 에너지의 변화를 식에 반영하지 못했기 때문인 것으로 생각된다.

FM2 조건의 경우에는 10% 손모율 한계치에 비해 공정반응에 의한 피복관 감육을 고려한 크리프가 더 보수적은 설계 한계치를 보여주지만 FM4의 경우에는 750°C 이하의 온도에서 10% 손모율 한계치가 더 보수적인 값을 보여주었다. 손모율 한계치의 경우 피복관 두께와 관련되어 있고 크리프의 경우엔 핵분열 가스 방출량과 플레넘 부피 등과 관련되어 있다. 이들 설계값을 변경하면 특정 사고상황의 유지시간과 온도범위에서 건정성을 유지할 수 있도록 설계 한계치를 조정할 수 있게 된다.

4. 결론

연소도가 증가할수록 공정반응의 활성화 에너지는 감소한다. 이런 영향 때문에 고온으로 갈수록 저연소도의 공정반응층 침투율이 현저하게 증가하여 고연소도의 침투율을 넘어서게 된다. 과도상태 경과시간이 증가하면 역시 감소하는 경향을 보이며 온도에 의해서는 Arrhenius 식을 따르는 것으로 여겨진다.

저연소도인 FM2 정상상태 조건에 의하면 공정반응은 크리프에 의한 파손 예상 시간을 크게 단축시키는 것을 알 수 있다. 고연소도인 FM4의 경우에는 고온으로 갈수록 공정반응 보다는 크리프에 의한 손상이 파손의 더 큰 요인이 된다.

저연소도인 FM2 조건의 경우 10% 손모율 한계치에 비해 공정반응에 의한 피복관 감육을 고려한 크리프가 더 보수적은 설계 한계치를 보여주지만 고연소도인 FM4의 경우에

는 750°C 이하의 온도에서 10% 손모율 한계치가 더 보수적인 값을 보여주었다.

연소도 증가에 따른 연료심/피복관 경계면에서의 상호 확산을 억제하는 precipitate의 생성과 조성의 변화, 온도에 따른 상변화 및 액상 형성 그리고 액상에 잔류하는 버블 등 공정반응층 침투율 평가를 어렵게 하는 복잡한 요인들이 산재하고 있다[9]. 이런 요인들을 상쇄하기 위한 지나친 보수적인 평가는 여러가지 설계 파라미터 값들을 필요 이상으로 제한할 가능성이 크다.

향후 보수성이 지나치게 큰 것으로 여겨지는 온도에 따른 공정반응층 침투율을 조성 및 상변화와 관련하여 수정해야 하며 연소도에 따른 침투율 변화에 관련된 실험데이터를 더 확보하여 연소도의 영향을 정량화해야 할 것으로 여겨진다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력중장기 연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

[1] R.G. Pahl et al., Irradiation Performance of Metallic Fuels, CONF-891103–35, Argonne National Laboratory, 1989

[2] H. Tsai et al., Irradiation Performance of U-Pu-Zr Metal Fuels for Liquid-Metal-Cooled Reactors, CONF-950426–4, Argonne National Laboratory, 1994

[3] J.M. Kramer et al., "Modeling the behavior of metallic fast reactor fuels during extended transients", Journal of Nuclear Materials, 204 (1993) 203~211

[4] P.R. Betten et al., Eutectic-Penetration-Induced Cladding Rupture in EBR-II Driver Fuel Elements, CONF-831047–120, Argonne National Laboratory, 1983

[5] 황완, 이병운 외, "온도와 조사량에 따른 HT-9 핵연료봉 변형 분석", 2000 춘계학술발표회 논문집, 한국원자력학회, 2000

[6] F.H. Huang, Transient Failure Behavior of HT9, WHC-SA-2513-FP, Westinghouse Hanford Company, 1994

[7] A.B. Cohen, "Fuel/cladding compatibility in U-19Pu-10Zr/HT9-clad fuel at elevated temperature", Journal of Nuclear Materials, 204 (1993) 244~251

[8] Y.Y. Liu et al., "Behavior of EBR-II Mk-V-type fuel elements in simulated loss-of-flow test", Journal of Nuclear Materials, 204 (1993) 194~202

[9] T.H. Bauer et al., Cladding Failure Margins for Metallic Fuel in The Integral Fast Reactor, Trans. of 9th Int'l conf. On SMiRT, 1987

[10] P.R. Betten et al., Eutectic Penetration Times in Irradiated EBR-II Driver Fuel Elements, CONF-831047–75, Argonne National Laboratory, 1983

표 1. WPF 실험 파라미터 및 결과

	Fuel type	Peak fuel burnup (a/o)	Hold temperature (°C)	Test duration (min.)	Eutectic penetration (% of cladding thickness)	Plenum fuel vol. ratio
FM-2	U-19Pu-10Zr	3.0	820	112 *	67	1.0
FM-4	U-19Pu-10Zr	11.4	770	68 *	24	1.5

* 파손 시간

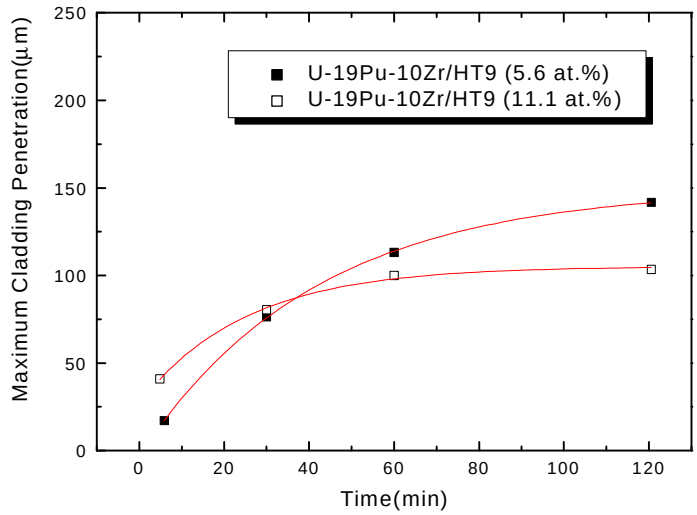

그림 1. 시간에 따른 공정반응층의 침투 깊이

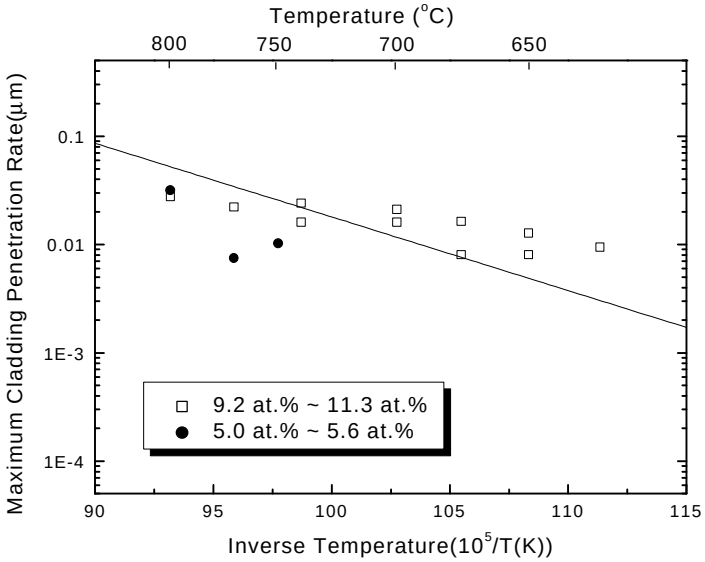

그림 2. FBTA 실험 데이터값과 Cohen의 상관식

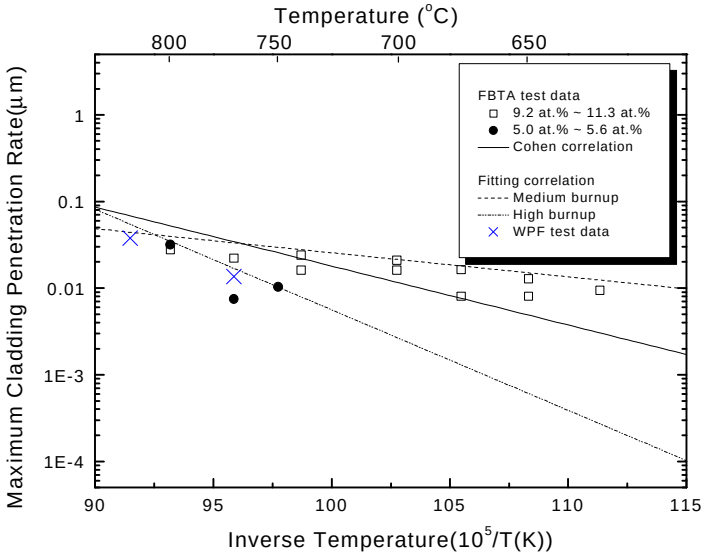

그림 3. 연소도에 따른 공정반응층 침입율의 회귀 상관식

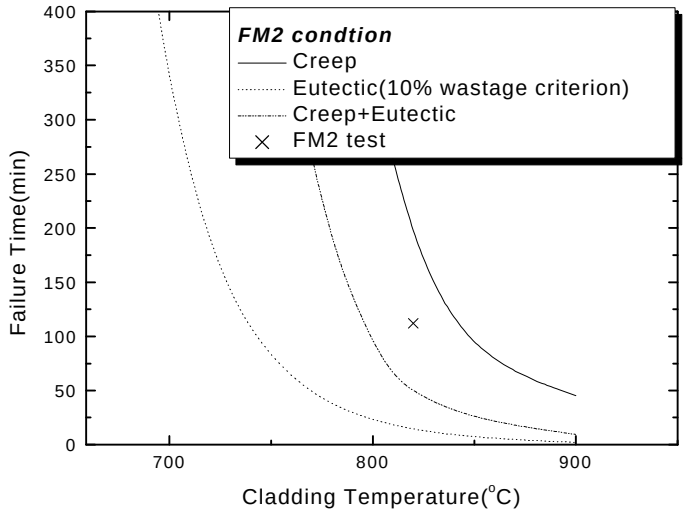

그림 4. FM2 조건에서 공정반응에 의한 10% 손모율 설계 제한치와 크리프 예상 파손 시간 비교

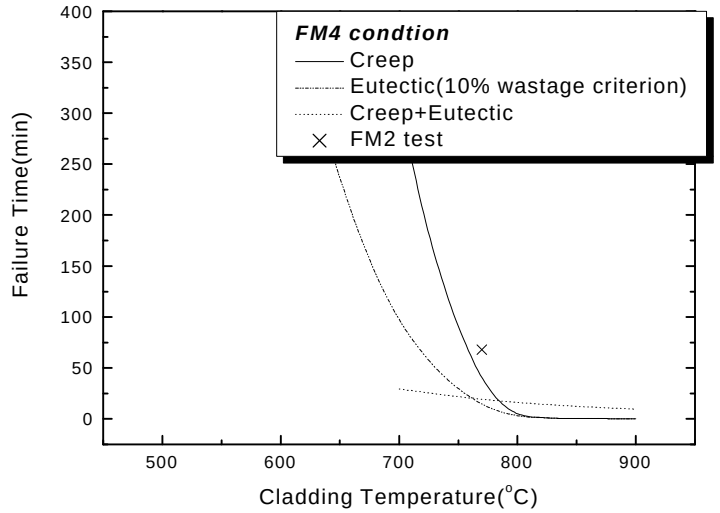

그림 5. FM4 조건에서 공정반응에 의한 10% 손모율 설계 제한치와 크리프 예상 파손 시간 비교