2000 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

국내 결함핵연료봉의 손상 원인 및 이차 손상 분석

Analysis of the Failure Cause and Secondary Failure of Domestic Defective Fuel Rods

김 선기, 유 길성, 서 항석, 김 은가, 민 덕기, 홍 권표
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

국내 결함핵연료봉에 대한 일차손상 원인 및 그에 따른 이차손상에 관한 현상을 분석하여 기존에 알려진 이차수소화 과정에 대한 기술적 모델(descriptive model)과 비교/분석하였다. 국내 핵연료봉 손상의 주원인은 debris fretting 혹은 flow-induced vibration 에 의한 fretting 으로 나타났으며 이는 외국의 핵연료 주요 손상원인과 일치한다. 국내 대부분의 결함핵연료봉에서 일차결함 발생 후 이로 인하여 내부 이차수소화 형태의 이차손상까지 진행되었다. 또한 이차수소화 손상은 일차결함으로부터 상당한 거리에 떨어진 위치에서 발생하였는데 이는 기존의 이차수소화 손상기구와 일치하는 현상이다. 일차결함이 임계크기 이하일 경우에만 대량수소화가 발생한다고 알려진 기존의 이차수소화 모델과는 달리 일차결함이 수 mm 크기임에도 불구하고 이차수소화가 발생할 수 있음을 확인하였다.

Abstract

The phenomenology for failure cause and secondary hydriding of domestic defective fuel rods is analyzed and compared with descriptive model of secondary hydriding. The primary defect is mainly caused by fretting due to debris-induced or flow-induced vibration, which is in accordance with the failure cause of foreign defective fuel rod. Most of defective fuel rods lead to severe secondary hydriding during the operation. These secondary hydriding defects were far away from the primary defect, which is consistent with secondary hydriding mechanism. On the contrary to the model that only primary defect less than critical size can lead to the secondary hydriding, it is also confirmed that several millimeter-size primary defect can bring about secondary hydriding.

1. 서 론

국제적으로 핵연료의 “zero defect”를 추구하고 있고 핵연료의 성능이 개선됨에 따라 그 손상발생 빈도가 상당히 줄어들었음에도 불구하고 여전히 국제적으로 핵연료 손상이 보고되고 있고, 특히 국내의 경우는 그 발생빈도 및 손상정도가 더욱 더 심각한 실정이다. 핵연료손상은 그 손상이 심각하지 않아 냉각수로의 방사능 누출이 기준치 이하일 경우에는 수리나 교체 없이 정상 운전을 하게 되지만 문제는 이러한 핵연료봉내 결함이 더욱 더 심각한 이차 손상을 야기시킬 수 있다는데 그 문제의 심각성이 있다. 일단 핵연료봉에 결함이 발생하였을 경우 그 결함은 소멸되기도 하지만 일반적으로 그 결함 자체가 원인이 되어 더 큰 이차손상을 야기시키게 된다. 이러한 이차손상은 주로 내부 이차수소화에 의해 발생하게 된다.

냉각수에 의한 피복관 산화반응을 통해 발생한 수소의 일부가 지르칼로이 피복관 외면을 통해 침투함으로써 연소도가 증가할수록 이에 따른 수소침투량도 증가 하게 된다. 이러한 수소침투는 정상상태하에서는 현재의 방출연소도에서 300~400 ppm 을 넘지 않는 수준이다. 따라서 정상상태하에서의 이러한 피복관 외면을 통한 수소침투는 피복관의 기계적건전성에는 큰 문제가 되지 않는다. 그러나 문제는 이차수소화에 의해 피복관내 수소화가 발생할 경우 수 천 ppm 에서 국부적으로는 최고 16,300 ppm 까지의 수소화물이 석출될 수 있기 때문에 피복관의 기계적 건전성에 치명적이다. debris fretting 혹은 flow-induced vibration 에 의한 fretting 등의 원인에 의해 피복관에 일차결함(primary defect)이 존재하게 되면 이러한 결함을 통하여 냉각수가 핵연료봉내로 유입되고 수증기화 되면서 피복관 내면에서 아래와 같은 산화반응을 하게 된다.

$$Zr + 2H_2O = ZrO_2 + 4H$$

(consume) (build-up)

이러한 산화반응의 결과 그 부산물로서 수소가 발생하게 되어 펠렛과 피복관 갭 내에는 수증기의 감소 및 수소분압의 증가를 가져오게 된다. 이러한 수소/수증기의 비가 어떤 임계치 이상이 되게 되면 피복관 내면에 형성된 산화막이 보호적인 성질을 갖도록 하기위해 필요한 수증기, 즉 산화제(oxidant)가 부족하게 되어 내면의 산화막이 보호적 성질을 유지할 수 없게 된다. 이러한 수소가 피복관 내면의 산화막중 취약한 부분을 통하여 침투함으로써 국부적인 대량 수소침투(massive hydriding)가 발생하게 되고 나아가 심각한 2 차수소화 손상에 이르게 될 수 있다. 즉 이러한 수증기 부족조건(steam

starvation condition)이 발생하여야 2 차수소화가 발생할 수 있으며 이러한 조건은 일차결함을 통해 유입된 냉각수 즉 수증기가 산화반응을 일으키며 일차결함부위에서 멀어질수록 수증기는 소모되고 수소는 생성되어 일차결함으로부터 어느 정도 떨어진 거리에서 이러한 수증기부족 조건이 만족되는 것으로 현재까지 알려져 있다 [1, 2]. 또한 최근 이슈가 되고있는 고연소도에서의 피복관 산화가속도 현상도 피복관내 산화막과 금속 경계부에서의 수소석출물이 주 원인인 것으로 보고되고 [3] 있기 때문에 피복관 수소침투 문제는 고연소도, 장주기 운전에서 반드시 해결해야 할 문제로 부각되고 있다. 본 논문에서는 국내 핵연료손상 사례를 중심으로 일차손상 원인 및 그에 따른 이차손상에 관한 자료를 분석하여 기존에 알려진 이차수소화 과정에 대한 기술적 모델(descriptive model)과 비교/분석하고자 한다.

2. 이차수소화의 기술적 모델 (descriptive model)

현재까지 알려져온 결함핵연료봉의 이차수소화에 대한 기술적 모델을 간단히 정리하면 다음과 같다.

1) 냉각수압력은 핵연료봉내 압력보다 높으므로 일차결함이 발생할 경우 냉각수가 봉내로 유입되어 냉각수 압력과 봉내 압력간의 평형이 이루어지게 된다.
2) 봉내로 유입된 냉각수는 갭내의 온도가 더 높으므로 수증기화된다. 일부 수증기는 H_2와 H_2O_2로 방사화분해된다.
3) 수증기 및 방사화분해 생성물들이 결함부위에서부터 확산해 나아가며 Zircaloy 피복관 내면을 ZrO_2 로 산화시킨다. 이 때 반응의 부산물로서 수소가 발생하며 그중의 일부(약 25%)는 균일하게 피복관내로 침투하게 되며, 그 나머지는 일단 갭내에 존재하게 된다.
4) 갭내의 수증기/수소 혼합기체는 냉각수 압력과 갭내의 압력차, 결함구멍의 크기(defect size) 및 갭의 폭(gap width)에 의해 결정되는 유속(flow rate)으로 갭내를 확산하게 된다 (molecular diffusion or convection).
5) 갭내 혼합기체내의 수소분압은 피복관 내면에서의 수증기산화 및 핵연료 펠렛에서의 산화에 따라 점점 증가하게 된다.
6) 피복관의 열구배는 heat flux 의 피크점에서 최대가 된다. 그러므로 피복관내로 침투

된 수소의 피복관 외면으로의 열확산(thermal diffusion)도 최대가 된다. 이 지점에서 피복관 내면의 온도는 최대가 되며 따라서 산화막의 self-healing 특성이 최대가 된다.

7) 혼합기체가 heat flux 의 피크점을 지남에 따라 수소의 분압은 더욱 증가하게 되며, 그리하여 산화막내 결함부위의 self-healing 특성이 감소하게 된다.
8) 수증기 유입속도가 충분히 느리고 펠렛과 피복관의 산화속도가 충분히 빠르다면 어떤 지점에서 수소/수증기의 비가 대량수소침투가 가능해지는 어떤 “critical ratio”를 넘게된다. 이렇게 될 경우 산화막의 취약부를 통해 이차수소화가 발생하여 “sunburst” 형태의 손상이 나타날 수 있다.
9) 어떤 국부적인 지점에서 가속수소화 혹은 대량수소화 조건이 갖추어 질 수 있는데 이러한 대량수소화는 주로 산화막내의 결함부나 불연속지점에서 발생한다. 일단 이러한 대량수소가 발생하기 시작하면 이러한 지점은 “hydrogen sink”로서 작용하게 된다.
10) 수소가 피복관내로 침투함에 따라 갭내 압력이 줄어들게 되며 압력평형(pressure equilibrium)을 위해 냉각수의 유입이 이루어진다. 이때 냉각수 유입속도는 수소침투속도에 비례하게 된다. 이러한 냉각수의 유입은 수소/수증기의 비를 감소시키므로 결국 결함주위에서의 대량수소침투 가능성을 줄이게 된다.

위에서 언급한 이차수소화 모델을 개략적으로 그림 1 에 나타내었다.

갭내에서의 압력평형에 도달하는 시간은 수 분에서 수 시간[4] 혹은 수 일[5] 정도로 알려져 있다. 일차결함이 작을 경우에는 평형압력에 도달하는데 걸리는 시간이 오래 걸리게 되고 반대로 클 경우에는 평형에 도달하는 시간이 상대적으로 덜 소요된다. 하지만 총 유입되는 냉각수의 양, 즉 갭내를 채우게 되는 수증기의 양은 같게 된다. 결국은 일차결함의 크기에 관계없이 갭내의 조건은 같은 것이다. 문제는 피복관 내면에서 산화반응이 일어나고 산화막이 형성된 후 갭내 gas mixture 의 H_2/H_2O 가 어떤 임계치를 넘게 되면 결국 산화막중의 취약부가 더 이상 수소침투에 대한 보호막 역할을 하지 못하게 되어 대량수소침투를 허용하게 되는 것이다. 이 경우 산화막이 대량수소침투를 허용하는데 걸리는 시간, 즉 수소침투에 대한 잠복기는 산화막의 두께가 1 μm 이상일 경우에는 산화막의 두께에 의존하지 않고 random 하게 나타나는 것으로 알려져 있어[6] 이차수소화가 발생하는데 걸리는 시간을 예측하는 것은 거의 불가능하다. 영광 4 호기 결함핵연료봉 피복관 내면의 산화막 두께는 연료봉 높이에 따라 약 4~11 μm 였음을 감안할 때 갭내 수소/수증기의 비가 대량수소침투가 가능한 임계비를 초과한 상

태라도 이차수소화는 바로 발생할 수도 있고 오랜 시간이 경과해서 발생할 수도 있다는 것이다. 수소침투에 따른 갭내 압력강하를 보상하기 위해 냉각수의 재유입 과정이 필요한데 이 때 일차결함의 크기가 크게 되면 수소침투를 억제하는 수증기의 유입이 원활해지므로, 즉 steam starvation condition 이 유지되기 어려워져서 이차수소화 손상이 발생하지 않은 것으로 알려져 있다. 하지만 고리 1, 2 호기 결함핵연료봉의 경우 및 최근의 국내 영광 4 호기 및 울진 2 호기 결함핵연료봉의 경우 일차결함의 크기가 이보다 훨씬 큼에도 불구하고 이차 수소화 손상이 발생하였다. 이러한 사실은 일차결함이 10^{-3}~10^{-2} mm 크기의 pinhole 이어야 이차수소화에 의한 대량수소침투가 발생할 수 있다는 기존의 모델과 부합되지 않는 현상이다.

3. 국내 손상핵연료 현황 분석

국내발전소에서 핵연료 손상을 경험했던 가압경수로 A, B, C, D 에 대한 손상 현황, 즉 일차결함의 발생 원인 및 그에 따른 이차손상 여부에 대해 그 현황을 분석하였다. 가압경수로 A 의 핵연료봉 A 의 경우 하단에서 675 mm 지점에서 직경이 약 2mm 인 관통결함이 발생하였는데 그 원인은 grid spring 과의 프레팅 마모에 의한 것으로 밝혀진 바 있다. 또한 그 결과 하단부에서 약 2,902 mm 지점에서 반경방향으로 배열된 수소화물이 석출되었으며 이 부위에서의 수소침투량은 약 1,520 ppm 이었다. 이러한 수소침투량은 결함이 없는 정상 핵연료 피복관에서는 나타날 수 없는 높은 수소침투량으로서 내부 이차수소화에 의한 것임을 시사한다. 가압경수로 A 의 핵연료봉 B 의 경우도 하단에서 42 mm 지점에서 직경이 약 2mm 인 관통결함이 발생하였다. 이 경우에도 역시 연료봉의 상단부에 6 개의 관통균열이 발생하였는데 이차수소화에 의해 발생한 것으로 밝혀졌다. 가압경수로 B 의 경우 7 주기에 장전된 48 개 assembly 중 10 개 assembly, 127 개 연료봉에서 손상이 발생하였는데 그 중 J44 assembly 시험대상 핵연료봉 20 개중에서 8 개의 핵연료봉이 손상된 것으로 나타났다. 그 중 일부는 이차수소화에 의한 이차손상까지 진행이 되었고 hydride blister 및 용접부의 파손 그리고 상부 봉단마개의 유실이 관찰된 바 있다. 가압경수로 C 의 손상핵연료봉 2 개에 대한 시험 결과 핵연료봉 A 의 경우 연료봉 하단으로부터 약 93 mm 지점에서 직경 0.8 mm 정도의 관통결함이 발생하여 연료봉 하단으로부터 약 2,660 mm 지점에서 이차수소화에 의한 이차결함이 발생하였다. 이 결함의 단면은 피복관 외면이 넓고 안쪽으로 거의 직선으로 관통하였으며 안

으로 들어갈수록 구멍이 작아지는 사다리꼴 모양이었다. 핵연료봉 A 의 경우 연료봉 하단부의 관통결함 위치가 봉 하단 제 1 번 지지격자체의 스프링과 딤플의 접촉점에서 떨어져 있었고 또한 이 관통결함의 크기가 상대적으로 작았으며 마모된 면이 거의 직선으로 되어있는 점으로 보아 작고 단단한 이물질(debris)이 1 번 지지격자체의 스프링과 셀사이에 끼어 연료봉에 관통결함을 야기시킨 것으로 결론지은 바 있다. 따라서 이물질에 의한 프레팅 마모가 봉하단부 관통결함의 직접적인 원인인 것으로 판단하였다. 핵연료봉 B 의 경우에는 봉하단부 기준 1,160, 1,410, 1,590 mm 위치에서 hydride blister 형태의 수소화 결함이 관찰이 되었으며 특히, 1,160 mm 위치에서는 수소화 정도가 심각해 발전소 현장 수조에서 연료봉 취출작업시 이 부위의 피복관이 떨어져나가 내부 연료가 노출될 정도였다. 비파괴 시험 및 파괴시험 결과 외부결함은 발견할 수 없었다. 따라서 내부 이차수소화에 의한 것이 아니라 내부 일차수소화에 의한 것임을 확인할 수 있었다. 즉 이 핵연료봉의 결함원인은 통상적 품질보증/관리활동하에서 발생가능한 우발적 수소화(random hydriding)인 것으로 판단되었다.

가압경수로 D 의 손상핵연료봉 A 의 경우 봉하단부로부터 약 3,003 mm 높이에서 5,900 ppm 의 높은 수소침투량이 관찰되었다. 이는 정상상태하에서 피복관 외면과 냉각수와의 산화반응에 따른 수소침투에 의해서는 나타날 수 없는 수소침투량으로서, 소위 내부수소화에 의해 침투된 수소량이라고 할 수 있다. 핵연료봉 A 의 경우 약 1.17 m 높이에서 결함이 발생하였는데, 이차수소화 손상이 약 3 m 높이에서 발생하였다. 핵연료봉 B 의 경우에는 3 cm 위치에서 일차결함 발생 후 2.4 와 2.6 m 위치에서 이차수소화 손상이 발생하였다. 이와 같이 두 핵연료봉 모두 이차수소화 손상은 일차결함과 어느 정도 멀리 떨어진 위치에서 발생하였는데 이는 기존에 알려진 내부 이차수소화 기구와 일치하는 현상이다. 핵연료봉 A 의 3,003 mm 위치에서의 수소화물 석출은 반경방향으로 배열된 석출을 보여주고 있으며 이 부위에서 상당한 균열이 발생하였고 피복관의 일부가 유실되었음을 확인할 수 있다. 또한 핵연료봉 B 의 경우에서도 2,348 mm, 2,428 mm, 그리고 2,614 mm 위치에서 반경방향의 수소화물이 석출되어 있음을 확인하였다. 2,348 mm 위치에서의 수소화물의 경우 육안상으로도 대략 수천 ppm 정도의 수소침투량임을 예측할 수 있으며 2,428 mm, 그리고 2,614 mm 위치에서는 이 보다 더 많은 수소침투량이 예상된다. 또한 소위 ‘sunburst’ 형태의 이차수소화 현상 및 그 부위에서 균열이 발견되었으며 특히 2,428 mm 및 2,614 mm 위치에서는 심각한 이차수소화 파손까지 발생하였음을 확인하였다. 지르칼로이 피복관내 수소화물은 농도구배가 존재하지 않더라도 온도구배에 의해서도 확산해 나아간다. 즉, 고온에서 저온으로 확산해 가는

성질이 존재하는데 원자로내 조건하에서는 피복관의 내면부위보다는 피복관의 외면의 온도가 낮으므로 외면쪽으로 수소화물이 확산해 나아가서 그곳에 수소화물이 모이게 된다. 그러한 과정을 통하여 'sunburst'형태의 이차수소화 현상이 나타나게 되는데 이를 그림 2에 나타내었다. 이러한 이차수소화 손상부위에서의 관통균열 혹은 파손은 원자로출력 정도 및 출력상승속도(power ramping rate)에 따라 가동중에 야기될 수도 있고 가동중에 야기되지 않을 수도 있다. 위에서 언급한 결함핵연료봉의 손상 원인 및 이차손상현황을 정리하면 표 1과 같다.

4. 결 론

국내 결함핵연료봉에 대한 일차손상 원인 및 그에 따른 이차손상에 관한 현상을 분석하여 기존에 알려진 이차수소화 과정에 대한 기술적 모델(descriptive model)과 비교/분석한 결과 다음과 같은 결론에 도달하였다.

1) 국내 핵연료봉 손상의 주원인은 debris fretting 혹은 flow-induced vibration에 의한 fretting으로 나타났으며 이는 외국의 주요 핵연료 손상원인과 일치한다.
2) 국내 대부분의 결함핵연료봉에서 일차결함 발생 후 이로 인한 내부 이차수소화, 즉 이차손상까지 진행되었다.
3) 이차수소화 손상은 일차결함으로부터 상당한 거리에 떨어진 위치에서 발생하였다. 이는 기존의 이차수소화 손상기구와 일치하는 현상이다.
4) 일차결함이 임계크기 이하일 경우에만 대량수소화가 발생한다고 알려진 기존의 이차수소화 모델과는 달리 일차결함이 수 mm 크기임에도 불구하고 이차수소화가 발생할 수 있음을 확인하였다.

참고 문헌

[1] J.C. Clayton, *ASTM STP 1023*, (1989) 266
[2] D.R. Olander, S. Vaknin, *EPRI TR-101773* (1993)
[3] A.M. Garde, G.P. Smith, and R.C. Pirek, *ASTM STP 1295*, (1996) 407

[4] W. D. Lees, *CRNL-1855* (1977)

[5] D. H. Locke, *IWGFPT-6* (1980)

[6] **김 선기 외**, 99' **추계원자력학회 학술발표논문집** (1999)

발전소	일차결함 원인	일차결함 크기	이차결함 형태
PWR-A (14×14 W-SFA)	Grid spring fretting	**직경** 2 mm	**내부 이차수소화**
PWR-B (16×16 KOFA)	Flow-induced vibration fretting	3 mm × 10 mm	**내부 이차수소화**
PWR-C (16×16 K-SFA)	Debris-induced fretting No primary defect	**직경** 0.8 mm No primary defect	**내부 이차수소화** **내부 일차수소화**
PWR-D (17×17 KOFA)	Debris-induced fretting (tentative)	1.4 mm × 3.2 mm 0.9 mm × 1.4 mm	**내부 이차수소화**

표 1. **국내 결함핵연료봉의 일차결함 원인 및 이차손상 형태**

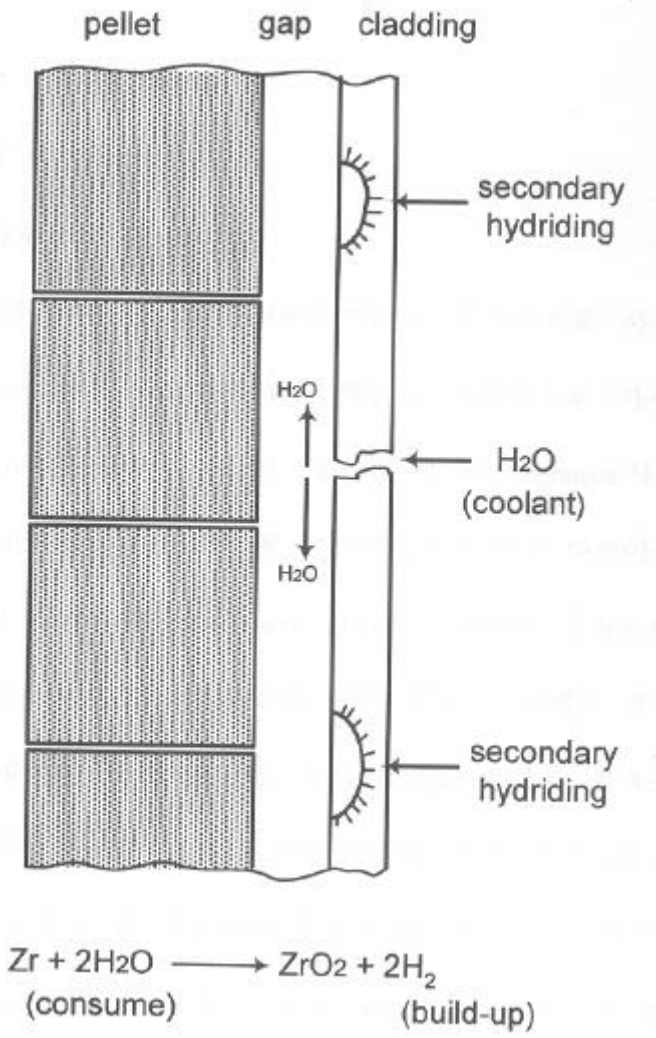

그림 1. 결함핵연료봉 갭내에서의 이차수소화 반응 개략도

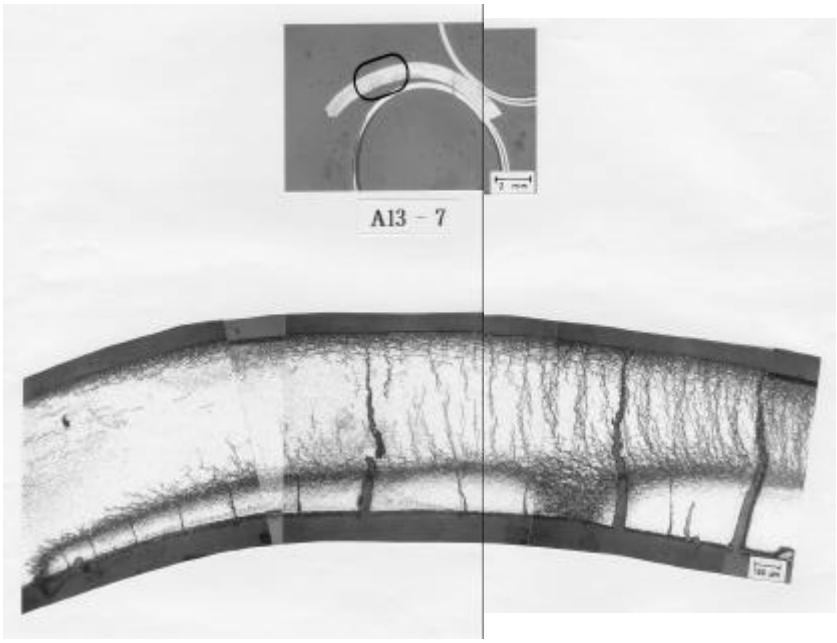

그림 2. **내부 이차수소화에 의한** “sunburst” **형태의** hydride morphology