

'99 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

결함 핵연료 피복관의 산화막 형성

Oxide Formation of Defective Fuel Rods

유길성, 서항석, 이은표, 김은가, 민덕기, 주준식
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

김경덕, 신상운, 이명찬
원자력환경기술원
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

원자력발전소에서 연소중 결함이 발생한 손상 핵연료봉들에 대한 피복관 내, 외부 산화막 형성에 관한 연구를 조사후시험 결과를 토대로 수행하였다. 시험 결과 손상 연료 피복관의 외부 산화막 형성은 결함이 없는 통상의 핵연료봉에서와 거의 같은 경향을 보여 주었으나, 피복관 내부 산화막의 경우 결함이 없는 핵연료봉의 경우보다 훨씬 두꺼운 비균질 산화막 형상을 나타내었으며, 같은 연료봉의 외부 산화막보다 더 두꺼웠다. 특히 비교적 온도가 낮은 것으로 예측되는 봉의 하단부 결함 부위의 내부 산화막은 비등형 경수로 핵연료봉에서 잘 나타나는 노odule형 산화로 판명되었다.

Abstract

The oxide forming study of some defective fuels, irradiated in commercial power reactor, was performed by using the PIE data. The outer oxide in the defective fuel rod shows the same trend with that of non-defective fuels, but the inner oxide indicates thicker than that of non-defective fuel. The inner one is thicker than that of outer one and has a non-uniform morphology. The inner cladding surface near through-hole defect shows a nodule type oxide which used to be observed in BWR.

1. 서 론

원자력 발전의 안전성을 유지하면서 경제적 이득을 극대화하기 위한 노력의 하나로 핵연료의 연소도를 높히고 연소기간을 연장하기 위한 노력이 전 세계 원자력 발전국들에 의해 계속되어 오고 있다. 이러한 고연소 핵연료 개발에 있어 해결해야 할 가장 큰 인자중 하나는 피복관 부식에 의한 산화막의 증가이다. 고연소 또는 장주기 연소중 피복관 산화막의 과도한 증가는 기존 피복관으로 주로 사용되는 Zircaloy-4 재료에서는 피할 수 없는 문제점중 하나이다. 따라서 현재 기존 피복관 재료보다 내부식성이 향상된 피복관의 재료 개발이 전세계적으로 수행되어오고 있다 [1-5]. 한편 이러한 직접적인 재료의 향상 노력과는 별도로 기존 피복관 재료에 대한 여러가지 로내 분위기에서의 정확한 부식기구의 이해를 위한 노내, 외 시험들을 통해 새로운 재료개발의 방향 설정 및 노내 부식관련 환경 제어를 위한 연구도 계속 수행되고 있다 [6,7].

지금까지 알려진 Zircaloy-4 피복관의 노내 부식은 산화층의 두께가 약 $2 \mu\text{m}$ 까지는 단위면적에 따른 산화이득량 곡선이 cubic rate law를 따라 증가하며, 이 두께에서 천이되어, 이후부터는 거의 linear rate law의 가속산화가 일어나는 것으로 지금까지의 여러 연구결과에서 잘 알려져 있다. 이러한 산화막 두께의 증가는 피복관 표면에 흡착된 산소가 기 형성된 산화층을 통과하여, 산화층/금속의 경계면에서 금속과 반응하여 계속적으로 진행되는 현상이다. 노외에서의 부식시험과는 달리 노내에서 Zircaloy 피복관의 부식에 영향을 주는 인자는 여러가지가 있지만, 그 대표적인 인자는 노내 냉각수의 산화 이온기에 의한 산화, Li 또는 Boron과 같은 냉각수 용해 이온의 작용에 의한 산화가속, 수소화합물 형성에 의한 산화막의 산화 추가 억제 역할 약화, 피복관 인장응력 증가로 인한 산화막의 추가 산화억제 기능 감소, 속중성자 조사에 기인한 화학적 특성 영향 및 고중성자 조사량에 의한 피복관 미세구조 변화 등이 있다.

그러나 상기 노내 부식기구들은 상당부분 노내와 비슷한 환경의 노외 실험결과들로부터 간접적으로 도출된 주장들로 궁극적인 노내 부식기구는 원자력발전소에서 실제 연소한 핵연료봉의 조사후시험을 통해서만 확인될 수 있다. 그러나 상용 발전소에서 실제 조사하고 나온 핵연료피복관에 대한 시험은 시편의 고방사성에 따른 작업자의 피폭 및 오염 가능성 등으로 일반 실험실에서는 다루기 어려운 실험환경을 요구한다.

따라서 본 연구에서는 실제 원자력발전소에서 연소중 결함이 발생한 핵연료봉의 결함원인을 조사하기위해 운반 및 조사후시험한 두개의 연료봉 시편들에 대한 파괴시험결과 나온 결과들을 이용하여, 실제 원자로 내에서 핵연료 피복관의 산화막 증가와 또한 결함발생 시 피복관 내부로의 냉각수 유입에 따른 내부 산화막 형성을 관찰하여 피복관의 여러가지 노내 산화기구 연구에 도움을 주고자 하였다.

2 시험방법

실제 원자로에서 조사된 핵연료봉에 대한 피복관 산화막 측정을 원자력연구소가 보유한 조사후시험시설을 이용하여 수행하였다. 시험 대상 연료봉은 국내 상용 원자력 발전로에서 7주기 조사중 결함이 발생한 두개의 핵연료봉("가" 연료봉 평균연소도는 11,806 MWD/MTU, "나" 연료봉 평균연소도는 7,210 MWD/MTU, 피복관 재질은 NRG 제조 Low Tin Zircaloy-4계열의 PCA)을 선정하였으며, 이에 대한 세밀한 비파괴시험 결과를 분석하여 연료봉 길이방향에 따른 시편 채취가 이루어졌다. 선정된 시편들은 금속조직 시험을 위해 방사선 차폐용 핫셀 내에서 준비작업이 수행되었다. 금속조직 시험시 현미경을 통해 피복관 단면의 내, 외면 산화막의 형태 및 두께를 관찰하였다. 각 시편들의 피복관 단면에서 원주방향으로 내, 외면 네 부위 씩 산화막의 두께를 측정하여, 이 네 부위의 두께들을 산술 평균한 값을 이 시편이 취출된 핵연료봉 길이방향 위치에서의 산화막의 평균 두께로 가정하였다.

3 결과 및 토의

3.1 산화막의 형상

"가" 연료봉 산화막 형상

그림 1 과 2는 "가" 연료봉 시편들에 대한 각 연료단면 위치에서의 피복관의 내, 외면 산화막 형상을 보여주고 있다. 그림 1과 2의 3과 9번 시료는 핵연료봉에서 결함이 있었던 부위이다. 그림 1에서 알 수 있듯이 "가" 연료봉 피복관 외면 산화막은 연료 상단부 결함부위를 제외하고는 비교적 얇고 조밀한 초기 산화막의 형상을 보여주고 있으며, 결함이 없는 부위에서는 정상 사용후 핵연료봉에서 나타나는 외면 산화막과 거의 유사한 형상을 나타내었다. 결함부위의 경우 비교적 온도가 낮은 부위인 3번 시료는 결함과 관계없이 얇고 균일한 산화막이 형성된 것으로 나타났으며, 연료 상부 비교적 높은 온도에 노출된 9번 시료의 경우는 결함이 인접한 부위가 반대편 부위보다 산화막이 두껍거나 더 불균일한 것으로 나타났다. 그림 2는 "가" 연료봉의 피복관 내면 산화막의 형상으로 그림 1의 외면 산화막들에 비해 1.5~3배 정도 두껍게 형성된 것으로 나타났고, 외면에 비해 산화막의 형상이 불균일하고 산화막내에 많은 기공과 균열이 존재하는 것으로 나타났다. 이러한 내면 산화막의 불균일 및 더 두꺼운 막의 형성은 핵연료 내부는 외부보다 더 높은 온도상태에 있으며, 외부면이 물과 접촉하고 있는 것에 반해 내부면은 핵연료와 직접 접촉하거나 핵분열기체 등에 노출되어 있으며, 이 상태에서 결함을 통해 외부로부터 침투한 물은 피복관 내부를 빠르게 산화시킨다. 또한 핵연료봉이 원자로 운전중에 결함이 발생하였다면, 핵연료 내부피복관에는 온도상승시 생겨나는 초기 산화막의 형성이 결여되며, 이러한 초기 생성막이 없는 상태에서의 갑작스런 물의 침투는 가속 산화를 발생하게 한다.

“나” 연료봉의 산화막 형성

그림 3과 4는 “나” 연료봉 시편들에 대한 내, 외면 산화막의 형상을 보여주고 있다. “나” 연료봉의 경우 연료봉 하단 30 mm, 상단 2,613 mm 부위에서 결함이 발생하였다. 각 시편의 피복관 내, 외부 산화막의 양상은 앞서 기술된 “가” 연료봉과 거의 비슷한 양상을 보여주었다. 1번 시료의 경우 각 부위별로 차이는 있으나 그림 5에서와 같이 일반적으로 비등경수로형 원자로 핵연료봉의 피복관에서 관찰되는 노들형태의 산화형상이 나타났으며, 이러한 사실은 이 부위 핵연료 피복관의 경우 결함 발생으로 인해 비등경수로의 운전조건과 유사한 환경에 처해 있었음을 유추할 수 있으며 결함 핵연료의 내부에서 이러한 노들형 산화막 형성 관찰은 지금까지 전 세계적으로 보고된 적이 없다.

3.2 산화막의 두께분포

그림 6과 7은 “가”, “나” 연료봉에 대한 길이방향 피복관 내, 외부의 산화막 두께분포를 보여준다. 그림 6의 “가” 연료봉의 외부면 산화막의 경우 25~29.0 μm 두께분포를 보였으며, 봉의 하단으로부터 1,500 mm까지는 약 2.5 μm 의 비교적 얇은 산화막을 형성하다가, 이 후 부터는 약 5 μm 의 산화막 두께를 나타내었다. 그러나 연료봉 상부의 결함부위에서는 29 μm 의 두꺼운 산화막이 형성된 것으로 나타났다. 내면 산화막의 경우 외면 산화막에 비해 상대적으로 두꺼운 산화막의 형성을 보여주었으며, 외면과는 달리 봉 하단부가 상단부에 비해 두꺼운 것으로 나타났다. 상부 결함부위에서의 산화막은 외부면에 비해 오히려 얇은 것으로 나타났다. 그림 7의 “나” 연료봉의 경우 내,외부 산화막의 두께변화는 앞서 “가” 연료봉과 유사하게 나타났으나, 하단부에서부터 30 mm 지점의 관통결함 부근에서 내면 산화막이 두껍게 형성되어 있는데, 이것은 이곳에서 노들형 가속산화가 일어났기 때문이다. 그러나 연료봉 전체적으로 볼 때 내, 외면 산화막의 두께가 비교적 균일한 것으로 나타났다. 연료봉의 상, 하부 결함부위에서는 상대적으로 두꺼운 산화막을 보여주었으나, “가” 연료봉의 경우와 비교해 두드러지지는 않았다.

4 결론

1) 원자로 조사 결함 연료봉 피복관 외면 산화막은 연료 상단부 결함부위를 제외하고는 비교적 얇고 조밀한 초기 산화막의 형상을 보여주고 있으며, 결함이 없는 부위에서는 정상 사용후 핵연료봉에서 나타나는 외면 산화막과 거의 유사한 형상을 나타내었다.

2) 결함부위의 경우 비교적 온도가 낮은 부위는 결함과 관계없이 얇고 균일한 산화막이 형성된 것으로 나타났으며, 비교적 높은 온도에 노출된 상부 결함부위의 경우는 결함에 인접한 부위가 더 두껍거나 불균일한 것으로 나타났다.

3) 결함 연료봉의 피복관 내면 산화막은 외면에 비해 1.5~3배 정도 두껍게 형성된 것으로 나타났고, 외면에 비해 산화막의 형상이 불균일하고 산화막내에 많은 기

공과 균열이 존재하며 최하단부 결함주위 내부 산화막에서는 노들형 산화현상을 보여주고 있었다.

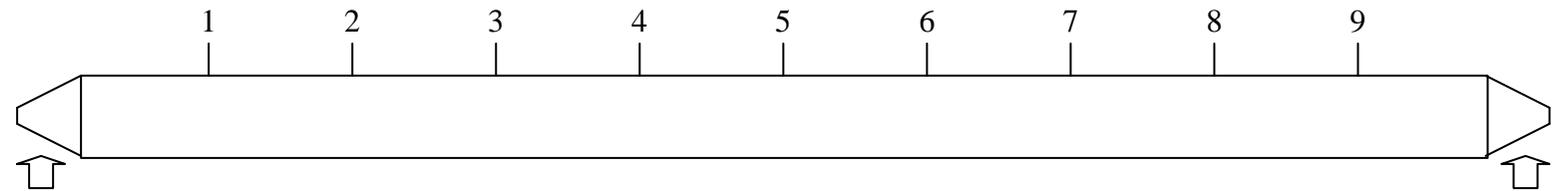
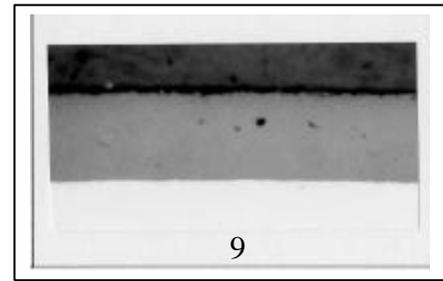
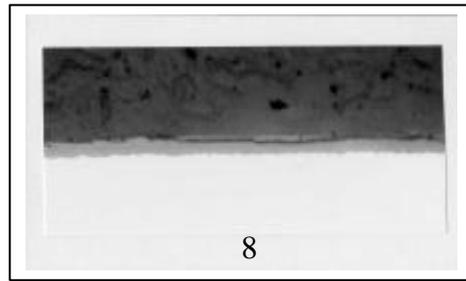
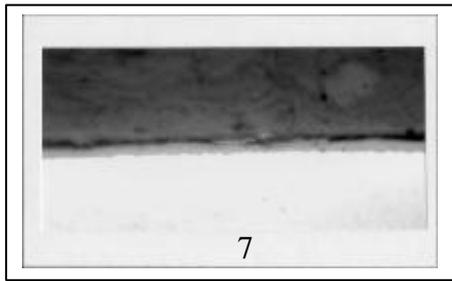
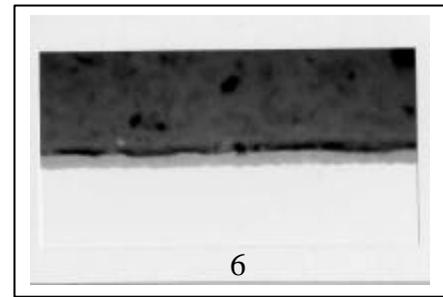
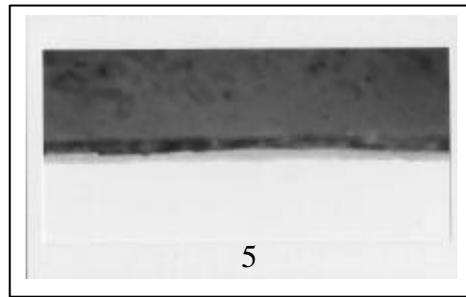
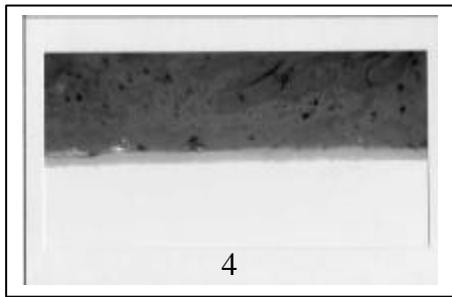
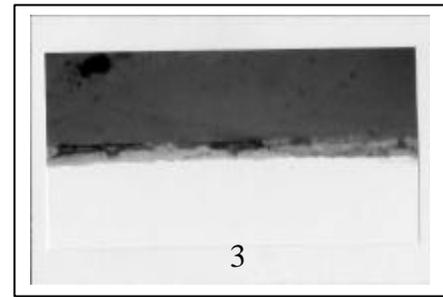
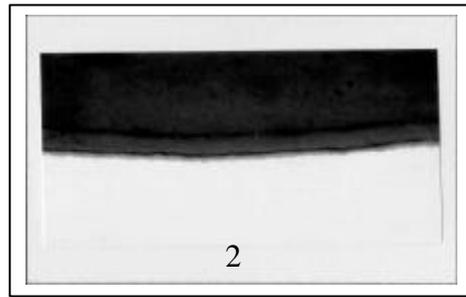
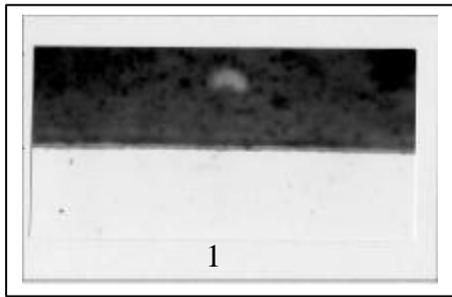
4) 결함 연료봉에 대한 길이방향 피복관 내, 외부의 산화막 두께분포는 내, 외부면 산화막의 경우 결함부위를 제외하고는 비교적 균일한 두께분포를 보였다.

감사의 글

이 연구는 한국전력공사로부터 자금지원을 받아 추진중인 연구과제의 일부결과이며, 관계자 여러분에게 감사의 말씀을 드립니다.

참고문헌

- [1] C. Tyzack, et al, J. Nucl. Mater., 66 163-186 (1977).
- [2] T. Isobe, et al, ASTM STP 1245, 346-367 (1994).
- [3] G. P. Sabol, et al, ASTM STP 1245, 724-744 (1994).
- [4] A. V. Nikulina, et al, ASTM STP 1295 785-804 (1996).
- [5] Y. Etoh, et al, ASTM STP 1295 825-849 (1996).
- [6] B. Cheng, et al, ASTM STP 1295 137-160 (1996).
- [7] A.R. Massih, et al, Proc. of the ANS Inter. Topical Meeting, Avignon, France, April 21-24 (1991).

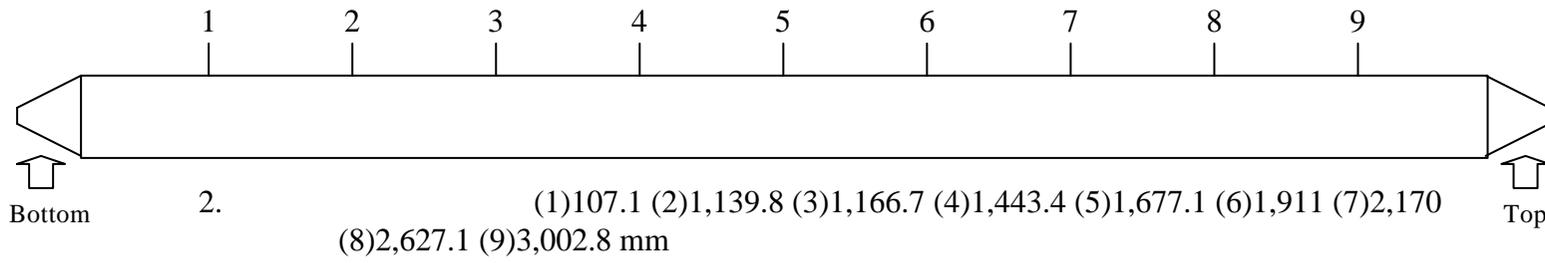
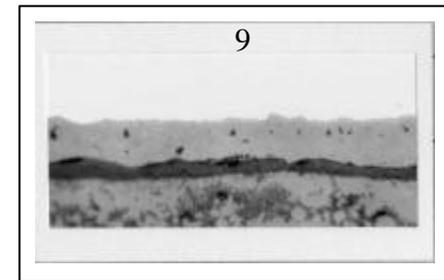
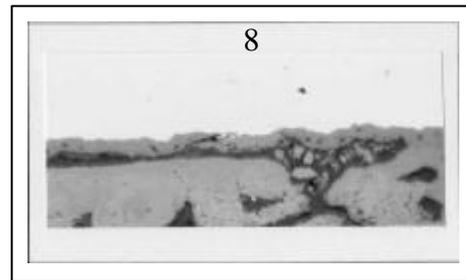
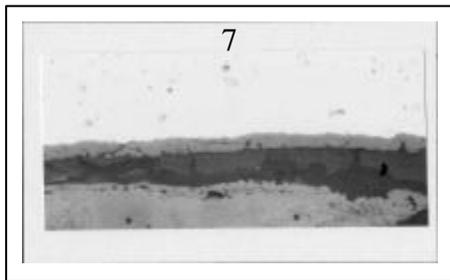
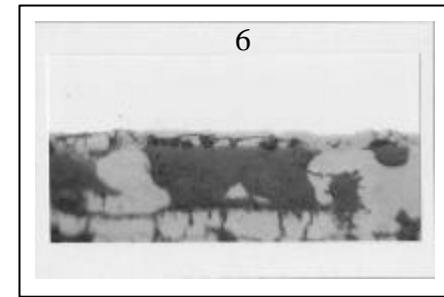
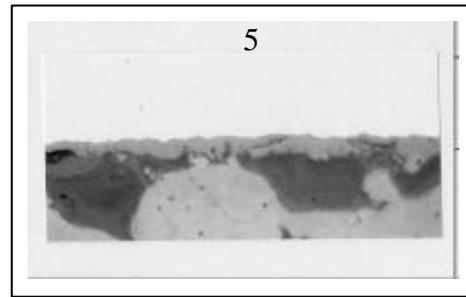
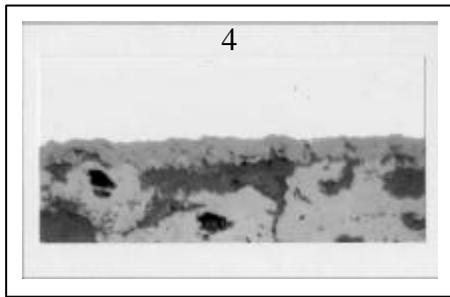
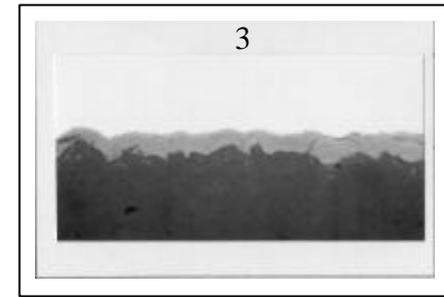
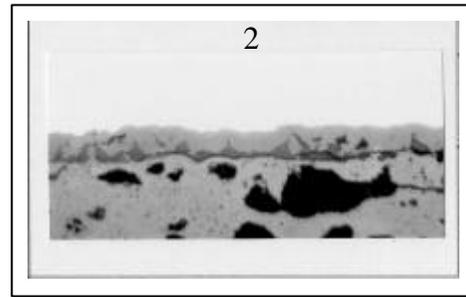
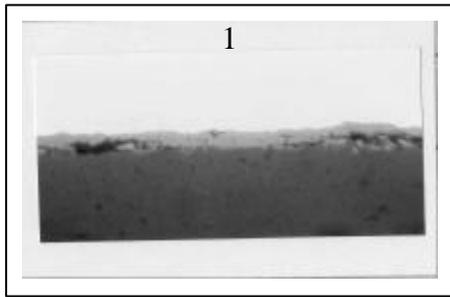


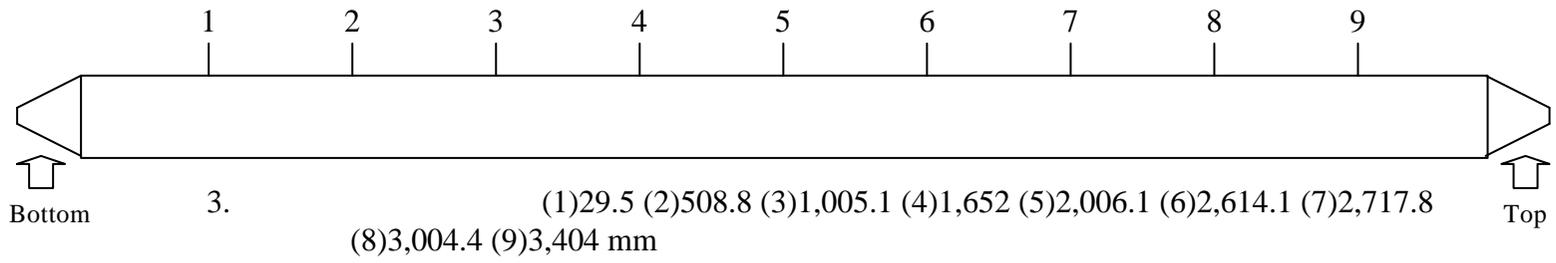
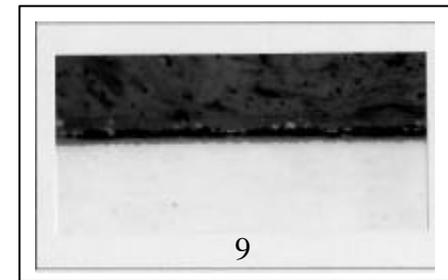
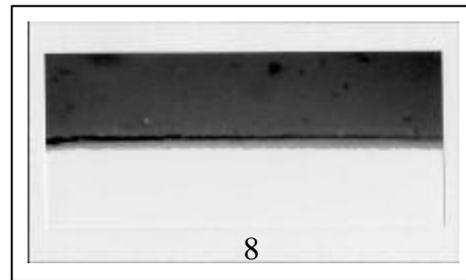
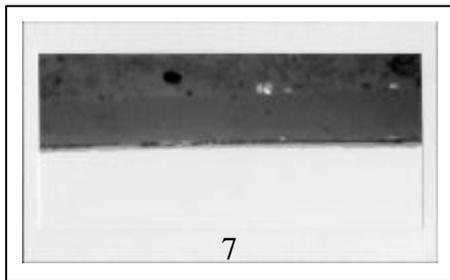
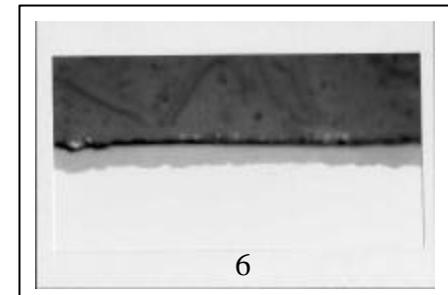
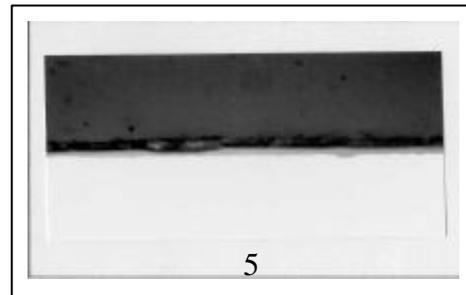
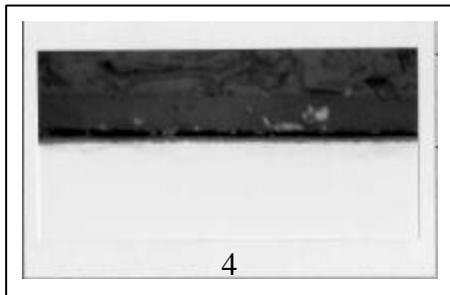
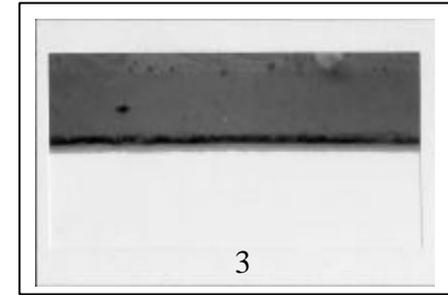
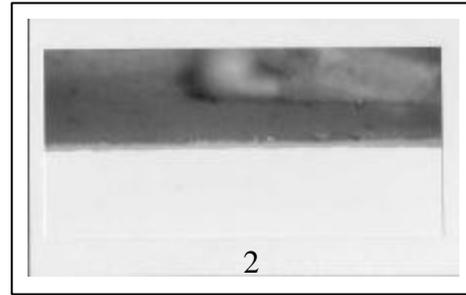
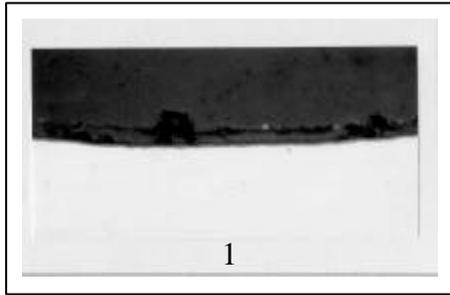
Bottom

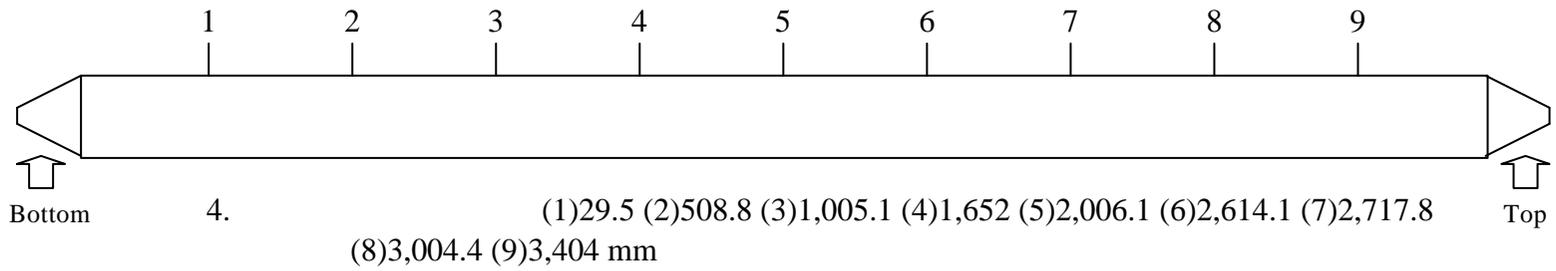
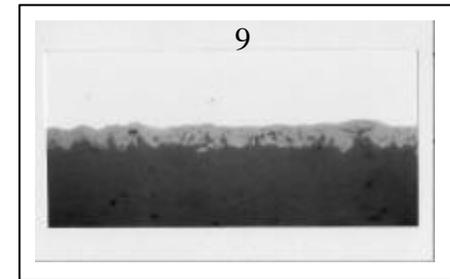
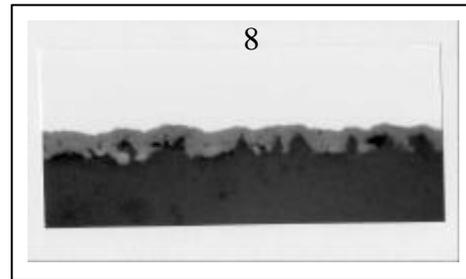
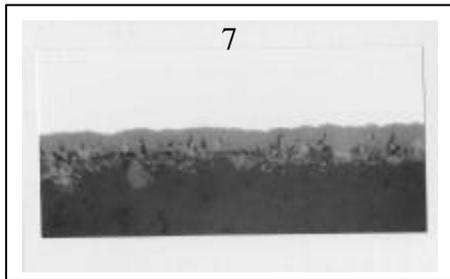
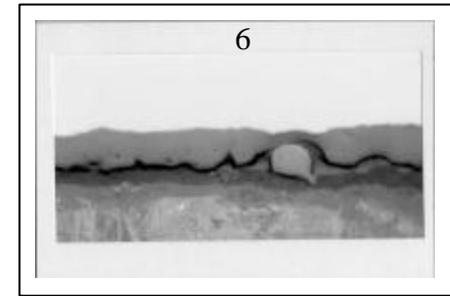
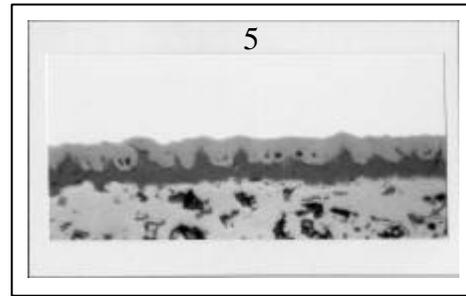
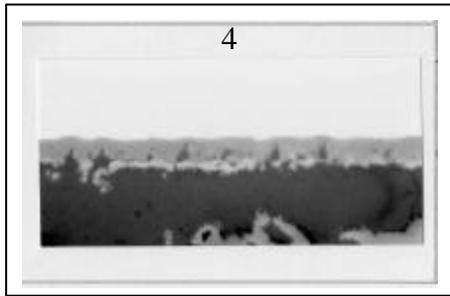
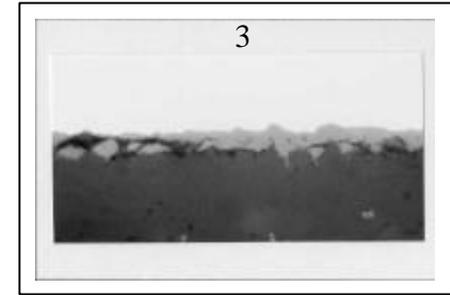
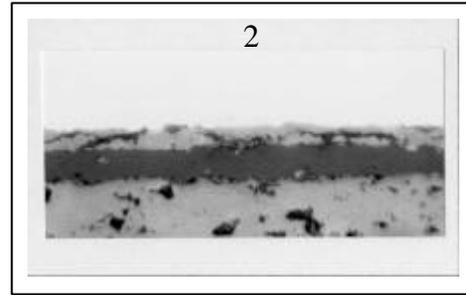
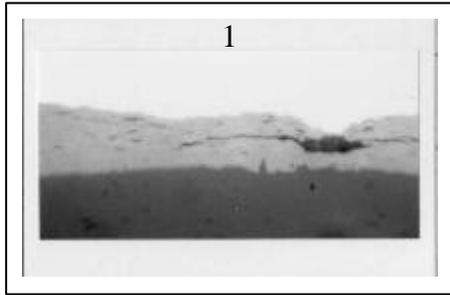
1.

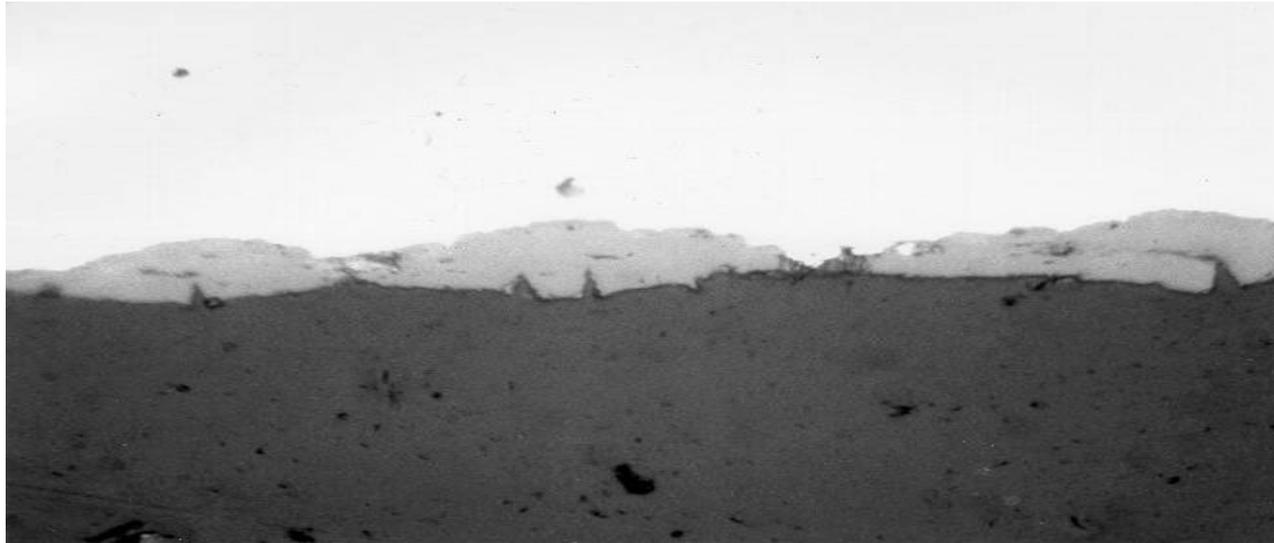
(1)107.1 (2)1,139.8 (3)1,166.7 (4)1,443.4 (5)1,677.1 (6)1,911 (7)2,170
(8)2,627.1 (9)3,002.8 mm

Top

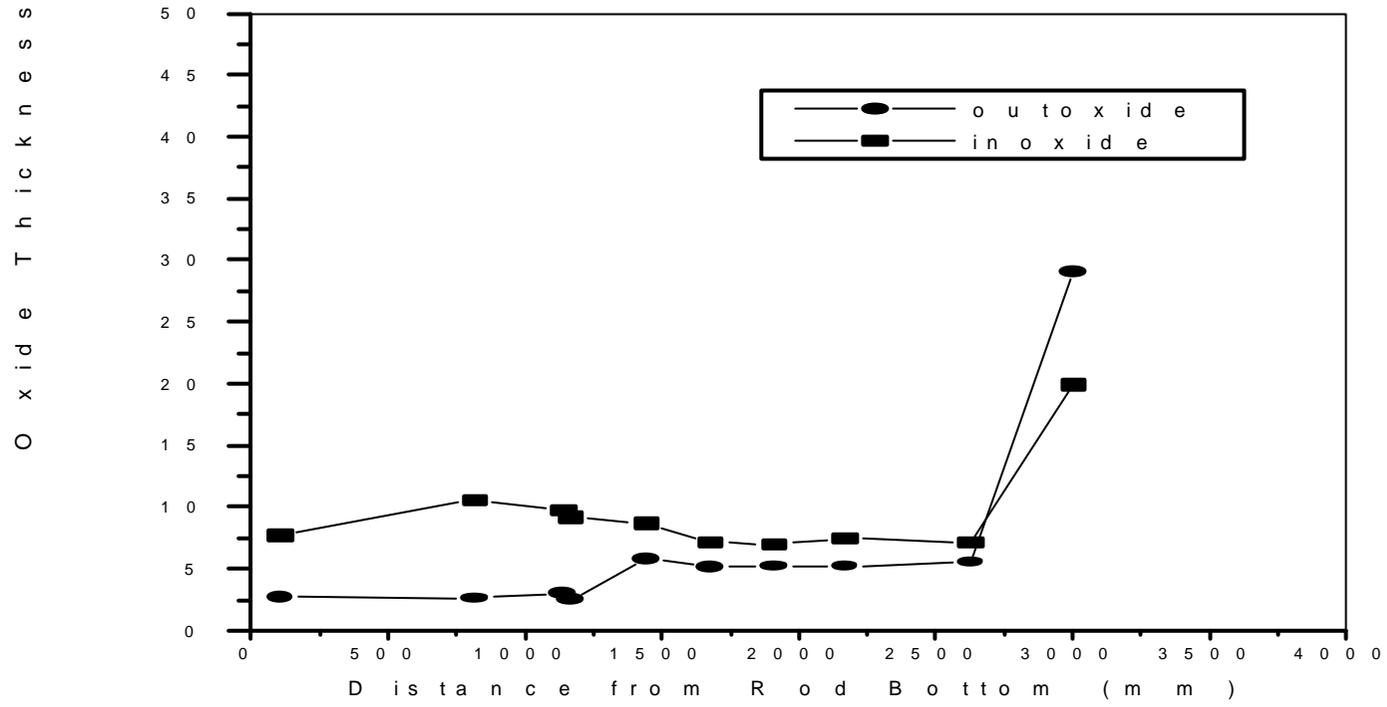




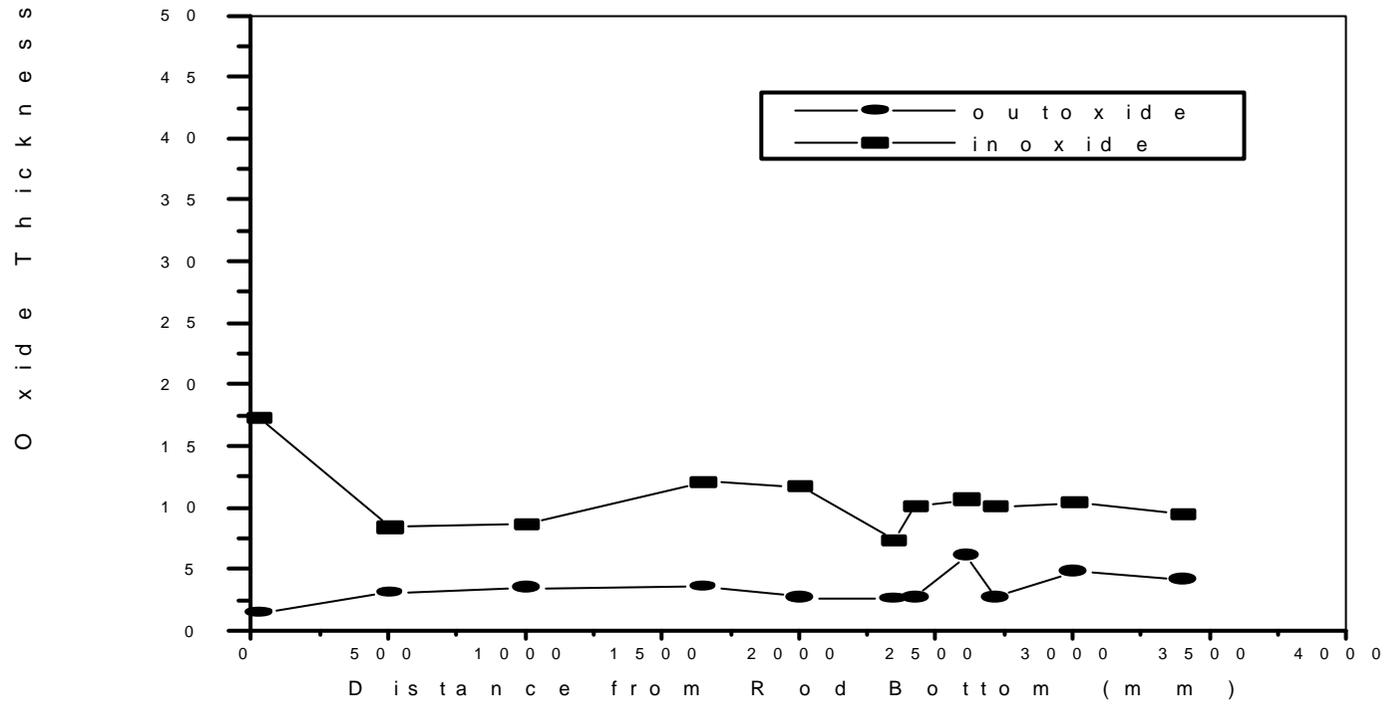




5. “ ”



6. “가”



7. “ ”