2004 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

# CRUD 생성 연구를 위한 고온 고압 Loop 장치 성능시험

# Performance Test of High Temperature and High Pressure Loop System for the Study of CRUD Formation

최영구, 김원호, 연제원
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

## 요 약

온도와 압력 조건이 원자로 작업환경을 모사할 수 있는 고온 고압 loop 장치를 구성하고 성능검증을 수행하였다. 냉각재의 화학적 상태를 실시간으로 모니터 하기 위해서 고압용 용존산소 및 용존수소 측정 장치와 고온 고압용 pH측정 장치를 loop 장치에 연결하였다. 고온 고압 loop 장치를 이용하여 방사성 부식 생성물 발생의 주된 원인으로 예상되는 국부비등을 유도하였으며 강제순환 비등 조건에서 용존수소량에 따른 입자 부착량을 측정하였다.

## Abstract

Development and performance test of a high temperature and high pressure loop system have been carried out. For the on-line monitoring of coolant chemistry, high pressure dissolved oxygen and hydrogen meter and high temperature and high pressure pH meter were installed in loop system. It was applied for the experimental investigation in the natural and forced convective boiling regime and characterization of the fuel crud formation with dissolved hydrogen content.

## 1. 서 론

가압 경수로형 원자로의 일차 냉각재 중 대부분을 차지하는 물은 고온 고압의 조건에서 높은 부식성을 나타낸다. 특히 노심으로부터 방출되는 방사선에 의해서 생성되는 물의

방사화 분해물들 ($H_2O_2$, $O_2$)은 부식성을 더욱 증가시킨다. 이처럼 부식성이 높은 냉각재가 일차 냉각계통을 따라서 이동하는 동안 금속 재료 표면의 산화물을 이탈시키고 이들 부식 생성물들은 냉각계통을 따라서 이동하는 과정에서 일차 냉각계통의 금속 재료 표면과 노심에 있는 핵연료 피복관 주위에 부착될 수 있다. 노심에 있는 핵연료 피복관 주위에 부착된 부식 생성물들은 중성자 조사에 의해서 방사성 부식 생성물로 활성화 되어 노심 중앙에서 이탈되어 일차 냉각계통의 금속 재료 표면에 다시 부착될 수 있다.

수용액 내에서 물의 비등은 금속산화물 미세입자가 금속표면에 부착되는 현상의 가장 중요한 인자로 알려져 있으며 유량, 냉각재와 핵연료 피복관 표면의 온도차, 핵연료 피복관 표면 상태 등에 의해서 영향을 받는다. BWR에서의 fuel crud 생성 메커니즘 연구 결과들에 의하면 크게 4단계로 구분하여 나타내고 있다.[1] 냉각재와 핵연료 피복관 표면의 온도차 (temperature gradient)에 의한 국부비등 (local boiling)이 일어나고, 국부비등 지점으로부터 기체 버블들이 형성되며 (gas bubble formation), 이들 버블에 의해서 방사성 부식 입자들이 성장 (promotes particle)하고, 가열 표면으로부터 기체 버블들이 이탈하면서 국부비등 위치에 fuel crud들이 부착 된다 (crud deposits).

핵연료 피복관 표면에서 발생하는 비등현상은 방사성 부식 생성물 발생의 주된 원인이 되고 일차냉각계통과 노심에서 이들 방사성부식 생성물들의 축적은 원자로 안정성에 막대한 영향을 미치는 중요한 요인이다. Fuel crud 생성으로부터 원자로의 건전성을 확보하기 위해서 핵연료 피복관 표면에서 일어나는 부식생성물의 부착을 최소화하는 일이 반드시 필요하고 이를 위해서는 비등 열전달 (boiling heat transfer) 연구가 선행되어져야만 한다. 특히 핵연료 피복재 표면에서의 급격한 온도 편차 때문에 일어나는 국부비등에 대한 연구가 선행되어져야만 한다.

열전달 (heat transfer) 효율에 영향을 미치는 여러 가지 요인들 중에서 비등현상은 산업 전반에 걸쳐 광범위하게 응용된다. 1960년대 이후, 대부분의 비등 관련 연구들은 기체-액체 2 상계 (two-phase systems)에 집중되어졌고, 기체-액체 2상 열전달 연구는 흐름 (flow)이라는 측면에서의 유동연구와 열전달이라는 측면에서의 비등과 응축 관련 연구 등 크게 두 가지로 나누어졌다. 유동연구와 관련해서는 유체의 압력강하 및 전열현상에 따라서 변화하는 유동양식 (flow patterns) 구분에 집중되어졌다.[2] 비등과 응축의 상전이 연구와 관련해서는 열전달 과정의 주된 메커니즘인 국부비등에 대한 많은 연구들이 진행되었다.[3] 국부비등은 대단히 효과적인 열전달 메커니즘으로 화력 및 원자력 발전용 증기발생기, 로켓연료 장치의 냉각, 전자 소자들의 냉각 등과 같은 다양한 기술에 응용된다.[4] 국부비등 과정은 비등핵 생성 (boiling nucleation), 버블 동력학 (bubble dynamics), 버블 상호작용 (bubble interaction), 버블주위의 온도분포 (temperature field around bubbles), 비등과정에서의 물리적 성질 (physical nature of boiling regime)등[5] 모든 과정들에 대해서 보다 깊이 있는 연구가 진행되어져야만 한다.

본 연구에서는 온도와 압력 조건이 원자로 작업환경과 동일한 형태 (320℃, 157 kg/㎠)

의 고온 고압 loop 장치를 구성하고 성능검증을 수행하였다. 냉각재 유량에 따른 정상상태의 온도분포와 냉각 후 온도분포를 각 부분별로 측정하여 반응기 주변의 온도편차를 유도하였으며, fuel crud 생성의 주요 요인 중 하나인 핵연료 피복재 표면의 국부비등 연구를 수행하였다. 냉각재 순환펌프를 가동시켜 루프 내에 일정한 유속을 만들어 냉각재를 순환시키는 경우와 그렇지 않은 경우 등 두 가지 조건에서 국부비등 실험을 실시하여 이들 결과를 비교하였다. Fuel crud 특성을 연구하기 위한 초기 단계로써 고온에서 SUS 304 히터표면에 부착되는 입자들을 용존산소 및 용존수소의 양을 변화 시키면서 확인하였다. 냉각재의 pH를 실시간으로 측정하기 위해서 고온/고압용 pH 측정 장치를 loop 장치에 연결하였다.

## 2. 실험 방법

그림 1은 온도와 압력 조건이 원자로 작업환경과 동일한 형태의 고온 고압 loop 장치이다. 본 실험 장치는 직경이 1/2 인치인 스테인레스 강관과 연결구들로 구성되어 있으며 고압 실험 중 발생할 수 있는 안전사고를 예방하기 위하여 6개의 안전밸브 (safety relief valve)를 설치하였다. 냉각재를 순환시키기 위하여 2 HP 전기구동 모터를 사용하는 2개의 원심펌프 (최대 3000 rpm)를 사용하였으며, 이들 펌프의 최대 유량은 각각 10 L/min.을 나타냈다. 고온/고압 환경에서의 금속산화물 입자 생성 및 물리화학적 특성연구를 위해서 메인 루프에 바이패스 루프를 이용해서 냉각재 시료채취 장치를 연결하였다. 시료채취 장치는 시료 주입펌프를 사용하여 냉각재의 화학적 조성을 위해서 요구되는 각종 화학첨가제들 (수소, 과산화수소, LiOH 등)을 메인 루프로 주입시킨다.

그림 2에 나타나 있는 것처럼 냉각재는 메인 루프의 반응기, 예열장치, 열교환기를 통과하여 펌프로 돌아오게 된다. 반응기 내부에는 원자로 핵연료 피복관을 모사한 4개의 카트리지형 히터가 장착된다. 히터 표면은 SUS 304 재질을 사용한 원통형 막대로 최대 열속 (heat flux)은 5.7 J/cm$^2$s를 나타낸다. 히터의 표면 온도를 측정하기 위해서 히터 상단표면과 하단 표면에 열전쌍을 각각 한 개씩 용접하여 부착하였으며 반응기 입구와 출구 그리고 반응기 내부에 있는 유체의 온도 측정을 위해서 각각 적당한 위치에 열전쌍을 설치하였다. 또 열교환기 출구, 시료채취 장치의 입구, 그리고 가압기 내부온도 측정을 위해서 각각의 위치에 열전쌍이 설치되어졌다.

실험에 사용한 $Fe_2O_3$ 용액은 적당한 농도로 제조한 후 초음파를 이용하여 30분간 분산시킨 후 check 밸브가 부착된 시료 주입구를 사용하여 주입하였다. 각각의 실험이 끝날 때마다 0.2% oxalic acid 용액을 사용하여 85℃에서 7시간동안 순환시킨 후 증류수를 사용하여 시스템 내부를 깨끗하게 유지하였다. 모든 실험을 수행하기 전에 진공 펌프를 사용하여 작동 유체 속의 기체를 제거하였으며 승온 과정에서 수차례 탈기한 후 실험하였다.

본 실험장치의 특성을 간단하게 요약하면 주 라인 및 반응기 재료는 SUS 316L을 사용하였으며 전체 부피는 12 L이며, 정상가동 시 반응기히터 출력은 6 KW (1.5 KW x 4), 냉각수 유량은 10 L/min (총 펌프 출력의 50%), 정상상태 온도는 위치별로 320℃(hot leg), 290℃(cross over), 280℃(cold leg), 정상상태 압력은 150 ㎏/㎠ (가압기 온도 : 340℃)로 원자로 계통과 동일하게 조절가능 하였다.

## 3. 결과 및 토론

### 3-1. Performance Data

그림 3은 본 연구에 사용된 고온 고압 loop 장치의 순환펌프 회전속도에 따른 유량 변화와 온도에 따른 압력 변화를 나타내었다. 순환펌프 회전속도 증가에 따라서 유량이 선형적으로 증가하다가 최대 rpm의 70% (2,100 rpm) 부근에서는 더 이상 증가하지 않고 포화 된다. 온도변화에 대한 압력변화의 분포도 물의 증기압 변화와 크게 다르지 않음을 알 수 있었다.

반응기 주변의 온도 편차를 살펴보기 위해서 냉각재 유량에 따른 정상상태의 온도분포와 냉각 후 온도분포를 각 부분별로 측정하였다. 정확한 온도 분포를 측정하기 위해서 히터 상부표면, 히터 하부표면, 반응기 내부, 반응기 입구, 그리고 반응기 출구 등 모두 다섯 지점에서 온도 측정이 이루어졌다. 표 1은 $Fe_2O_3$ 용액의 유량에 따른 각각의 위치에서 측정한 온도를 나타낸다. 냉각재의 유속을 조절함으로써 모사 원자로 냉각재 장치의 고온부(H/L)와 저온부(C/L)의 온도차를 조절할 수 있었다. 냉각재의 유속이 10 L/min 인 경우, 고온부(H/L)와 저온부(C/L)의 온도차는 최소 7℃ 정도인 것으로 나타났다. 반면에 유속이 상대적으로 작은 3 L/min 인 경우에는 온도차가 최소 10℃ 정도로 더 크게 벌어짐을 확인하였다. 고온부(H/L)와 저온부(C/L)의 온도차는 냉각재의 유속과 메인 루프의 열교환기의 열교환 정도에 따라 더 큰 온도차를 유도할 수 있었다.

### 3-2. Natural Convective Boiling

그림 4는 고온 고압 loop 장치를 사용하여 자연대류 비등이 일어날 경우 관찰한 국부비등 패턴들이다. 200 ppm $Fe_2O_3$ 용액을 사용하여 각각의 온도에서 12시간 동안 국부비등을 유도하고 냉각시킨 후 관찰한 히터 표면을 디지털 카메라로 촬영하였다. 각 히터용량은 1.3 KW이며 최소 히터만을 사용하였다. 100℃에서는 한 개, 200℃에서는 3개, 그리고 250 ℃에서는 4개의 히터가 사용되어졌다. 그림 4(a)는 실험을 위하여 깨끗하게 준비된 히터 표면을 나타낸다. 그림 4(b), 4(c), 4(d)는 각각 100℃, 200℃, 그리고 250℃에서 12시간 동안 국부비등을 유도한 히터표면들이다. 각각의 온도에서 전형적인 국부비등 특성을 나타내는 원형의 산화물 deposit spot이 관찰되었으며 이들 spot의 크기는 냉각재의 온도가 증가함에 따라 점점 작아지고 있다. 이와 같은 결과는 고온 고압 loop 장치를 이

용한 자연 대류 비등에서 국부비등이 일어나고 있음을 직접적으로 알 수 있을 뿐만 아니라 지금까지 국부비등 특성연구와 관련된 많은 문헌[6-8]에서 언급하였듯이 일정한 열속(heat flux)하에서 압력이 증가할수록 deposit spot의 크기가 점점 작아지고 있음을 확인할 수 있었다.

### 3-2. Forced Convective Boiling

그림5는 고온 고압 loop 장치를 사용하여 강제대류 비등을 유도하여 관찰한 국부비등 패턴들이다. 200 ppm $Fe_2O_3$ 용액을 사용하여 각각의 온도에서 12시간 동안 국부비등을 유도하고 냉각시킨 후 관찰한 히터 표면을 디지털 카메라로 촬영하였다. 각 히터용량은 1.3 kW이며 4개의 히터가 사용되어졌다. 그림 5(a)는 실험을 위하여 깨끗하게 준비된 히터 표면을 나타낸다. 그림 5(b) 와 5(c)은 각각 100℃ 와 200℃에서 12시간 동안 국부비등을 유도한 히터표면들이다. 이들 히터 표면 역시 각각의 온도에서 전형적인 국부비등 특성을 나타내는 원형의 산화물 deposit spot이 관찰되었으며 이들 spot의 크기 역시 온도가 증가하면서 작아지고 있음을 알 수 있다. 이와 같은 결과는 고온 고압 loop 장치를 이용한 강제 대류 비등에서도 국부비등이 일어나고 있음을 보여준다.

현재 실험 조건에서 고온 고압 loop 장치를 정상적으로 작동할 경우 200℃까지는 deposit spot의 관찰을 통하여 국부비등이 일어나고 있음을 직접적으로 확인 할 수 있지만 loop 시스템의 온도나 압력이 증가하면 deposit spot의 크기가 현저하게 감소하게 되어 이를 구분해 내기가 쉽지가 않다. 열전달 밀도가 일정할 경우 히터 표면에서 생성되는 기포의 크기는 반응기의 압력에 의해서 결정되어 진다. 압력이 높을수록 그 크기는 작아지고 deposit spot 크기 역시 작아 질 것이다. 한편, 동일한 조건에서 강제 대류 비등의 경우 자연 대류 비등 보다 열전달 밀도가 상대적으로 낮고, 기포의 크기가 작아져 결과적으로 deposit spot의 크기 역시 작다.[9] 그러므로 고온 고압 loop 장치를 이용하여 200℃ 이상에서 핵 비등 현상을 가시화 시킨다는 것은 현재 시스템에서는 많은 어려움이 있다.

### 3-4. Fuel CRUD Formation

그림 6은 냉각재의 수화학 조절에 따른 fuel crud 특성을 연구하기 위해서 수소가스가 녹아 있는 순수한 물을 이용하여 고온 고압 loop 장치의 용존산소 및 용존 수소 변화량을 측정하였다. 고온 고압 loop 장치에 9L정도의 순수한 물을 넣고 3 bar의 수소 분위기에서 30분 정도 유지한 후 시스템의 온도를 상승시키면서 3-4회 탈기시킨다. 적정온도(가압기 320℃, 반응기 300℃, 120 bar)에 도달하면 시료채취 장치를 이용하여 용액에 수소가스를 녹이고 10 mL/min. 용량의 주입펌프를 이용하여 고온 고압 loop 장치로 되돌려 보낸다. 주입펌프의 작동 시간에 따른 용액의 용존 수소 및 용존 산소 변화를 측정하였다. 시료주입 펌프를 작동하기 전 전체 시스템의 용존 산소는 0.244 ppm이고 용존 수소

는 14.36 cc/kg이다. 용존 산소는 펌프 작동 시간이 증가 할수록 차츰 감소하여 10 시간이 넘어서면 1 ppb로 일정한 값을 나타낸다. 이와는 반대로 용존 수소는 시간이 증가할수록 차츰 증가하여 35 cc/kg 정도에서 일정한 값을 나타낸다.
그림 7은 고온 고압 loop 장치를 사용하여 강제순환 비등 조건에서 용존수소량에 따른 입자 부착량을 측정하기 위하여 실험한 히터 표면들이다. 200 ppm $Fe_2O_3$ 용액을 사용하여 각각의 조건에서 12시간 동안 1.5 L/min.의 유속으로 순환시키면서 입자부착을 유도하고 냉각시킨 후 관찰한 히터 표면을 디지털 카메라로 촬영하였다. 1.3 kW용량의 카트리지 히터 4개가 사용되어 졌으며 전체 용량은 12시간동안 5.2 kW로 일정하게 유지되어졌다. 그림 7(a)은 실험을 위하여 깨끗하게 준비된 히터 표면을 나타내고 7(b)은 aerate조건 (DO=0.03 ppm, DH=1.702 cc/kg)에서 실험한 히터 표면을 나타내고 7(c)은 수소분위기 (DO=6.0 ppb, DH=23.43 cc/kg)에서 12시간 동안 실험한 히터표면이다. 7(b)은 붉은색을 나타내며 다량의 Fe 입자들이 부착되었음을 육안으로 확인할 수 있다. 이와는 반대로 7(c)은 상대적으로 붉은색이 덜하며 부착된 입자의 양도 소량임을 알 수 있었다. 히터 표면에 부착된 철 입자들을 탈착시킨 후 ICP-AES를 사용하여 정량분석 한 결과 aerate 분위기에서는 0.116 mg/$cm^2$, 수소분위기에서는 0.026 mg/$cm^2$의 양이 부착되었음을 알 수 있었다.

## 4. 결론

Fuel crud 생성의 주요 요인 중 하나인 핵연료 피복재 표면의 국부비등을 모사할 수 있는 고온 고압 loop 장치를 개발하고 이에 대한 성능검증을 수행하였다. 순환펌프 회전속도 증가에 따라서 유량이 선형적으로 증가하다가 최대 rpm의 70% (2,100 rpm) 부근에서는 더 이상 증가하지 않고 포화 된다. 온도변화에 대한 압력변화의 분포도 물의 증기압 변화와 크게 다르지 않음을 알 수 있었다. 냉각재 순환펌프를 가동시켜 loop 내에 일정한 유속을 만들어 냉각재를 순환시키는 경우와 그렇지 않은 경우 등 두 가지 조건에서 국부비등 실험을 실시하였다. 유속이 없는 조건에서 국부비등을 12시간 동안 유도시킨 후 관찰한 히터 피복재 표면에서는 전형적인 국부비등 특성을 나타내는 원형의 산화물 deposit spot이 관찰되었다. 냉각재의 온도가 증가함에 따라 deposit spot의 크기가 점점 작아지고 있음을 알 수 있었다. 순환펌프를 작동시켜 냉각재가 루프 내에서 일정한 유속을 갖는 조건에서 12시간 동안 국부비등을 유도한 후 관찰한 히터표면 역시 전형적인 국부비등 특성을 나타내는 원형의 산화물 deposit spot들을 관찰 할 수 있었으며, 이 결과로부터 강제순환 조건에서도 국부비등이 일어나고 있음을 확인하였다. 강제순환 비등 조건에서 용존수소량에 따른 입자 부착 실험을 통하여 fuel crud 생성에 대한 초기 연구를 수행하였다.

## 5. 참고 문헌


1. P. Rudling and G. Wikmark, "A unified model of Zircaloy BWR corrosion and hydriding mechanisms", *J. Nucl. Mater.* **265**, 44 (1999).

2. L. G. Neal and S. M. Zivi, "The stability of boiling water reactor and loops", *Nuclear Science and Engineering*, **30**, 25 (1967).

3. D. R. H. Beattie and W. J. Green, "The existence of nucleate boiling in diabatic two-phase annular flow", *Int. J. Heat Mass Transfer,* **27**, 315 (1984).

4. J. R. Barbosa Jr., G. F. Hewitt, and S. M. Ricaardson, "High-speed visualisation of nucleate boiling in vertical annular flow", *Int. J. Heat Mass Transfer*, **46**, 5153 (2003).

5. W. Frost and C. J. Kippenhan, "Bubble growth and heat transfer mechanism in the forced convection boiling of water containing a surface active agent", *Int. J. Heat Mass Transfer*, **10**, 931 (1967).

6. C. Y. Han and P. Griffith, "The mechanism of heat transfer in nucleate pool boiling-Part Ⅰ", *Int. J. Heat Mass Transfer*, **8**, 887 (1965).

7. H. K. Forster and N. Zuber, "Dynamics of vapor bubble and boiling heat transfer", *AIChE J.,* **1**, 531 (1952).

8. D. E. Forster and R. Greif, "Heat transfer to a boiling liquid-mechanism and correlation“, *J. Heat Transfer*, **81C**, 43 (1959).

9. V. K. Dhir, "Nucleate and transition boiling heat transfer under pool and external flow conditions", *Heat Transfer*, **1**, 129 (1990).

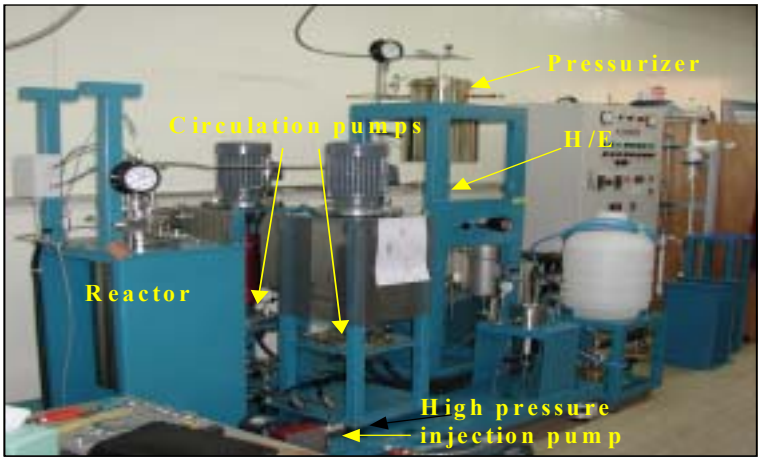


Fig. 1. General view of the simulated reactor coolant system.

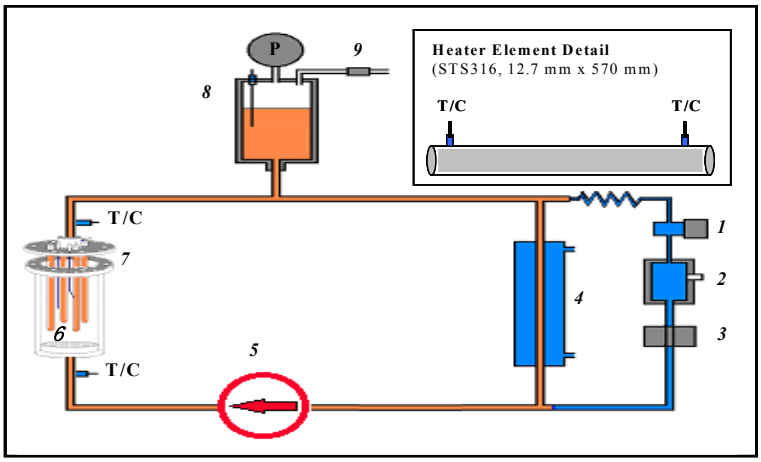


Fig. 2. Schematic diagram of the experimental apparatus. Key to components: (1) pressure reducing valve; (2) sampling chamber; (3) injection pump; (4) heat exchanger; (5) main circulation pump; (6) heaters; (7) reactor (test section); (8) pressurizer; (9) safety valve.

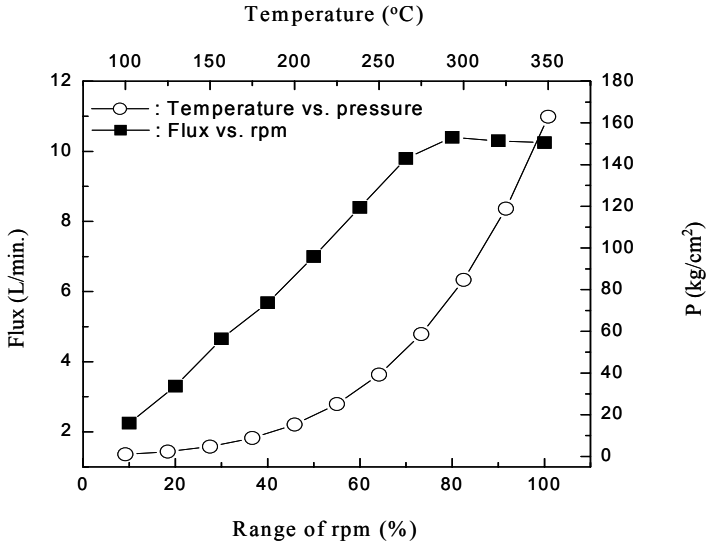


Fig. 3. Performance data of the simulated reactor coolant system.

**Table 1. Temperature gradient data on flux**

(℃)

| **Flux** | | **$H_T$** | **$H_B$** | **Inlet** | **Inside** | Outlet |
|---|---|---|---|---|---|---|
| 3 L/min. | Steady | 318 | 308 | 288 | 298 | 300 |
| | Cooling | 315 | 304 | 281 | 286 | 295 |
| 10 L/min. | Steady | 318 | 308 | 295 | 302 | 302 |
| | Cooling | 312 | 305 | 284 | 296 | 297 |

$H_T$: Top of the Heater, $H_B$: Bottom of the Heater

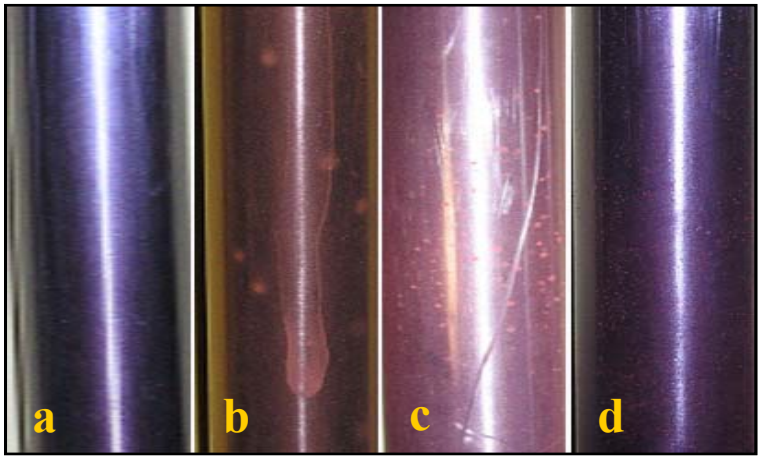


Fig. 4. Photographs of the heater surface taken in the pool boiling: (a) before deposition; (b) after deposition at 100℃; (c) 200℃; (d) 250℃.

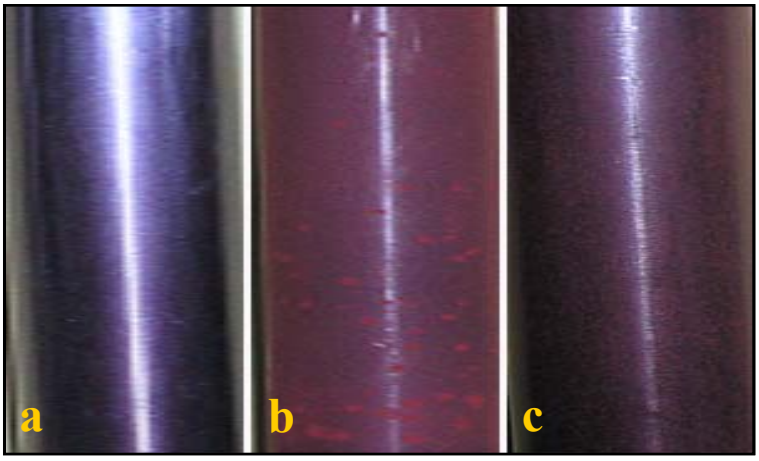


Fig. 5. Photographs of the heater surface taken in the forced convective boiling at the flow rate of 1.5 L/min.: (a) before deposition; (b) after deposition at 100℃; (c) 200℃.

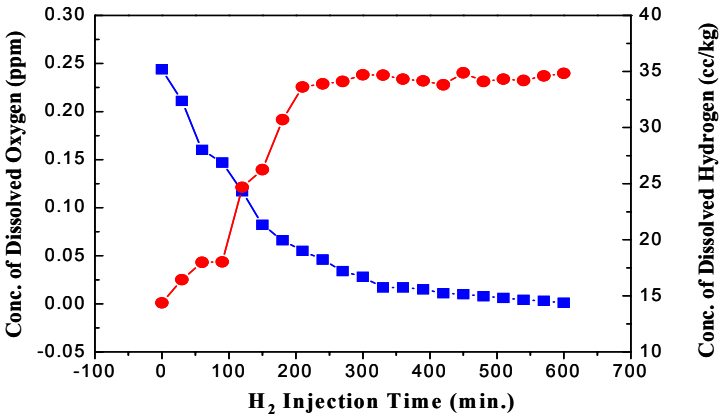


Fig. 6. Change of concentrations of dissolved oxygen and hydrogen in the coolant with hydrogen injection time.

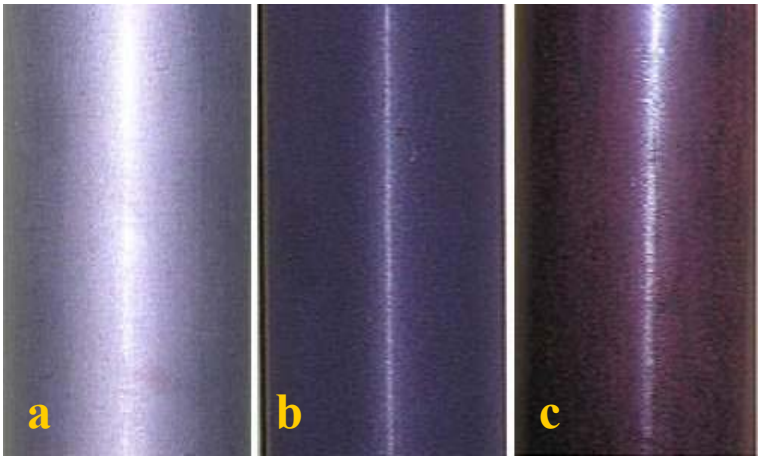


Fig. 7. Photographs of the heater surface taken in forced convective boiling at the flow rate of 1.5 L/min, 200℃; (a) before deposition; (b) after deposition in DO = 6 ppb and DH = 23.43 cc/kg; (c) DO = 0.03 ppm and DH = 1.702 cc/kg.