

냉각재 상실사고(LOCA)에서 지르칼로이-4 피복관의 열충격 취화 거동 Thermal Shock Behavior of Zircaloy-4 Fuel Cladding in Loss of Coolant Accident

김준환, 이종혁, 이명호, 백종혁, 정용환

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요약

본 논문은 원자력발전소의 대표적인 설계기준 사고인 냉각재 상실사고 (LOCA) 환경에서 피복관이 겪는 열충격 취화 거동을 산화에 의한 취화정도를 나타내는 인자인 ECR (Equivalent Cladding Reacted)과 취화정도를 평가하는 기계적 시험방법인 링 압축시험을 이용하여 연구하였다. 본 논문은 Zircaloy-4의 대표적인 산화식으로 알려진 Baker-Just 관계식과 미세구조상의 상분율을 이용하여 취화도를 계산하였다. 그 결과 기존의 Baker-Just 관계식으로 도출한 ECR 기준이 충분한 안전 여유도를 보임이 확인되었다.

Abstract

It was investigated that the behavior of fuel cladding which undergoes high temperature steam environment simulated LOCA condition by thermal shock and ring compression test. It was attempted to calculate ECR (Equivalent Cladding Reacted) that greatly related to assess LOCA embrittlement to apply Baker-Just equation, which was revealed that considerable safety margin can be attained in conventional 17% ECR criteria.

1. 서론

냉각재 상실사고 (Loss Of Coolant Accident, 이하 LOCA)는 정상적인 원자로 냉각재 압력경계가 손상될 때 발생하는 사고로 원자로 일차계통은 계통 개방에 의한 압력강하와 이에 수반하는 비상노심 냉각계통의 작동에 의한 reflooding 과정을 겪는다. 초기에는 붕괴열의 발생과 냉각수 상실에 의하여 연료봉 주위의 열유동이 핵비등에서 막비등으로 천이함에 따른 열전달 능력의 감소로 핵연료봉의 급격한 온도상승이 발생한다. 원자로 냉각시스템의 감압과 핵연료봉 내 압력의 증가로 인한 압력차이와 고온변형에 의하여 핵연료 피복관은 부풀어 오르고 내압 하중을 이기지 못하면 파열이 발생되게 된다. reflooding 이전까지는 계속되는 온도 상승으로 인해 피복관이 고온에서 수증기 산화반응을 겪게 된다. reflooding 후에는 고온 취화된 피복관이 찬 냉각수와 접촉하게 되면서 급냉효과에 의하여 피복관 길이방향으로 수축 열응력을 받게 되며 지지격자에 고착되어 변형이 구속된 (restraint) 환경에서 산화반응으로 소실되지 않은 피복관 두께가 일정 이하로 수축 하중을 지지할 수 없을 때, 열충

격에 의한 취성 파단을 겪게 된다[1]. 최근의 원자력발전소가 장주기, 고연소도 추세로 가면서 보다 가혹해진 노내환경과 심각한 사고 시나리오가 예상되고 있어 LOCA시 요구되는 피복관의 건전성이 더욱 필요한 현실이다. 설계기준사고에 대하여 핵연료 피복관의 건전성을 평가하는 기준을 설정하기 위해 1973년 Rule-Making Hearing이 열렸고 이에 합의되어 10CFR 50.46에 다음과 같이 “1) 최대 핵연료 피복관 온도는 어디든지 2200°F (1204°C)를 넘어서지 않는 것과 2) 피복관의 총 산화량은 어디든지 산화 이전 피복관 두께의 0.17배를 넘어서지 않는다.”를 골자로 하는 피복관 취성기준[2]이 제정되어서 현재까지 적용되고 있다. 그러나 최근 들어 17% 산화량 기준이 지나치게 보수적이라는 의견과 함께, 고연소도 환경에서 이러한 취성기준이 적절한지에 대해서는 많은 논의가 진행되고 있다.

본 논문은 대표적인 설계기준 사고인 LOCA시 피복관이 겪는 열충격 거동을 산화량과 결부시켜서 평가하였으며 열충격 취화에 미치는 인자에 대하여 분석하였다.

2. 실험방법

2-1 열충격 실험장치

시험에 사용된 지르칼로이-4 피복관은 Sn 함량이 1.3wt%로 9.5mm의 외경과 0.57mm의 두께를 갖는 상용 피복관이다. 그림 1은 LOCA 모사장치를 나타낸 그림이다. 300mm로 자른 지르코늄 피복관의 양 끝에 고전류가 흐르는 전극을 장착하여 전류의 흐름에 따른 저항 가열에 의하여 시편을 1000°C 부터 1250°C까지 원하는 시간동안 산화시켰다. 표 1은 시험조건을 나타낸 matrix이다. 시편 주위에는 quartz로 만든 chamber를 설치하고 chamber 내에 고온의 수증기를 흘려넣어 모사된 LOCA 환경을 만들었다. 일정 산화시간 후 refill 및 reflooding 조건을 모사하기 위하여 700°C로 냉각하여 100초간 산화 후 냉각수를 채워넣어 급랭하였다. 고온산화 중 의도하지 않은 피복관의 변형을 방지하고 비구속 조건을 모사하기 위하여 부착된 전극과 절연체의 무게만큼 역하중을 가하여 시편에 실제 가해지는 하중이 0이 되도록 하였다. 피복관의 위쪽에는 load cell이 장착된 crosshead를 연결하여 열충격시 피복관의 길이 변화 및 구속 조건에서의 하중변화를 측정할 수 있게 하였다. 시험이 끝난 후, 시편을 가로방향으로 절단하여 광학현미경을 이용한 미세구조 관찰과 주사전자현미경을 이용한 산소농도 측정을 수행하였다.

2-2 링압축 시험

열충격 시험이 끝난 시편을 15mm의 길이로 절단한 후, 인장시험기를 이용하여 시편을 파단에 이르기까지 분당 1mm의 속도로 압축하였다. 산화막이 있는 시편인 경우 취성을 띤 산화층과 연성을 띤 금속층에 의하여 하중-변위곡선은 산화막이 최대하중을 버틴 후 1차 파단이 일어나며 금속층이 잔여 하중을 버티다 파단하는 톱니모양의 곡선을 얻게 된다. 본 논문에서 연성은 산화된 피복관이 처음으로 파단되는 점의 변위를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3-1 열충격 시험 결과

그림 2는 온도의 변화에 따른 피복관 길이의 변화를 나타낸 그림이다. 고온 산화영역에 들어서면 피복관의 길이가 시간에 따라 증가하다가 온도가 700°C로 낮아지면 길이는 시간에 따라 감소하게 된다. 이는 온도가 낮아짐에 따른 열수축의 영향뿐만 아니라 고온 산화영역에서는 피복관이 체심 입방구조인 등방성의 晶상을 갖게 되어 이것이 시간에 따른 축방향 길

이의 증가를 가져오는 반면, 700°C 온도영역은 피복관의 상이 육방 조밀구조인 비등방성의 α 상으로 되어 이것이 시간에 따른 축방향 길이의 감소를 가져오는 요인으로 작용하기 때문이다[1].

그림 3은 산화온도와 산화시간에 따른 피복관의 열충격 거동을 나타낸 파괴지도 (failure map)이다. 그림과 같이 일정온도와 시간 이상에서 열충격에 의한 파단을 보이고 있으며 온도가 높아질수록 파단에 이르는 시간이 짧아지는 활성화 거동을 보이고 있다. Chung의 연구에 의하면[3] 지르칼로이-4의 열충격 취화는 997°C 이전에 일어나지 않고 997°C와 1277°C 사이에서 Baker-Just 관계식에 의한 활성화 거동을 보이며 1277°C 이상부터 급격한 취성파단 거동을 보임이 보고되고 있다. 본 연구 결과 비교적 낮은 온도인 1000°C에서는 낮은 기울기를 보이다가 그 이상 온도에서 기울기가 Baker-Just의 기울기와 비슷하게 변화하는 것이 관찰되고 있다. 열충격 data를 이론적 산화량과 비교하여 도시한 결과 지르칼로이-4의 열충격 취화는 20%를 상회하는 높은 안전 여유도를 보이고 있다.

3-2 링압축 시험 결과

그림 4는 온도와 산화시간에 따른 피복관의 연성변화를 도시한 그림이다. 온도가 높아지고 산화 시간이 길어질수록 피복관은 약간의 변위변화에도 파단을 일으키게 된다. 그림에서 open 기호는 열충격에 파단을 일으키지 않는 시편을 의미하고 semi-closed 기호는 시편이 17% 산화량 기준을 넘어섰지만 열충격에 파단을 일으키지 않은 시편을 의미하며 closed 기호는 열충격 시험 중 파단을 일으킨 시편을 의미한다. 그림에서 실제 파단이 일어난 시편이 최대 0.2mm 변형 후에 파단이 일어난 반면, 17% 이상 산화된 시편은 최대 0.8mm 이상 변형을 수용할 수 있음을 보인다. 그러나 초기직경의 10% 이하의 연성을 보일 때 파단을 일으킨다는 Bohmert 취성기준[4]에 입각하였을 때는 17% ECR 취성 기준이 잘 들어맞음을 보이고 있다.

3-3 취화도 평가

총산화량은 피복관과 반응한 모든 산소가 화학양론적 (stoichiometric) 지르코늄 산화물로 변환되었다고 가정할 때의 산화물 두께를 의미하며[2] 취화도를 나타내는 인자인 ECR (Equivalent Cladding Reacted)는 다음과 같이 구할 수 있다. 피복관이 m_i 에서 m_f 로 단위면적당 무게가 증가하면 $m_f - m_i$ 양 만큼의 산소가 흡수된다. 이를 산소의 원자량 M_o 로 나누면 반응하거나 흡수한 산소의 단위면적당 몰이 얻어진다. 화학양론적인 지르코늄 산화물의 지르코늄 : 산소의 비가 1 : 2이므로 산화막 형성에 관여한 지르코늄의 단위면적당 몰수는 $(m_f - m_i)/2M_o$ 이다. 여기에 지르코늄의 단위몰당 부피인 원자량대 밀도비 M_{Zr}/ρ_{Zr} 를 곱하면 산화반응으로 형성된 지르코늄 금속의 두께가 얻어진다. 이를 수식으로 표현하면 (1)과 같다.

$$ECR(\%) = \frac{t_m}{t_i} = \frac{\frac{m_f - m_i}{2M_o} \times \frac{M_{Zr}}{\rho_{Zr}}}{t_i} \times 100$$

(1)

t_i : 피복관의 초기두께

t_m : 산화물로 변환된 금속의 두께

피복관의 질량변화는 실험으로 직접 구하거나 적절한 산화모델을 사용하여 적용할 수 있다. 본 연구에서 적용한 산화모델은 NRC에서 지르칼로이의 기준 산화식으로 권고한 Baker-Just 식으로서 다음의 식으로 나타낸다[5].

$$\Delta m_{Zr}^2 = 33.3 \times 10^6 \exp(-45,500/RT)t \quad (2)$$

Baker-Just 식에서 구한 무게증가량이 산소 흡수량이 아닌 반응한 지르코늄의 양이므로 ZrO_2 형성에 관여한 산소분자의 몰과 지르코늄의 몰이 같다는 점을 이용하여 다음과 같이 변환할 수 있다[6].

$$\Delta m_{O_2} = \frac{M_{O_2}}{M_{Zr}} \Delta m_{Zr} = 0.35 \Delta m_{Zr} \quad (3)$$

아울러 산소흡수량과 형성된 산화막간 관계를 도출하기 위해 산화막 두께만을 이용한 ECR값을 (4)와 같이 도출하였다.

$$ECR(\%) = \frac{t_m}{t_i} \times 100 = \frac{t_{ox}}{1.56t_i} \times 100 \quad (4)$$

t_{ox} : 산화막의 두께

1.56 : 지르코늄 산화물의 Pilling-Bedworth ratio (= t_{ox}/t_m)

그림 5는 산소흡수량에 바탕을 둔 ECR값과 산화막 두께에 바탕을 둔 ECR값을 비교한 그래프이다. 낮은 ECR 영역에서는 두 값이 같은 값을 보이다가 높은 ECR 영역에서는 산화막 두께에 바탕을 둔 ECR값이 낮은 값을 보이고 있다. 이는 산화온도와 시간이 늘어날수록 산화막 외에 stabilized α 에 투입된 산소의 확산이 무시 못할 정도로 커져서 산화막 두께만으로 취화도를 반영하기 어렵기 때문이다. 이는 그림 6에서도 확인할 수 있는데 1100°C에서 1000초 산화시킨 경우, 중간층보다 ZrO_2 산화막 영역이 크게 작용하여 급격한 농도구배를 겪는 반면 산화시간이 3000에서 7000초로 길어질수록 중간영역인 stabilized α 의 형성과 함께 상의 분율이 커짐으로 인하여 농도구배가 완만하게 감소하고 있어 산화막 두께 외에 중간층인 stabilized α 상이 취화에 미치는 영향이 커짐을 알 수 있다. 이에 산화막과 stabilized α 의 두께 분율이 0.44이상이면 피복관이 열충격에 의한 취성파단을 일으킨다는 기준[7]에 입각하여 본 연구에서 수행한 피복관의 산화막과 stabilized α 의 분율과 ECR 값을 그림 7에 도시하였다. ECR값 만큼 큰 여유도를 보이는 것은 아니지만 산화막과 stabilized α 의 분율도 취성기준에 대하여 여유도를 가지고 있다.

이와 같이 산화막과 중간상인 stabilized α 가 취화에 영향을 미치지만 17% 산화량과의 관

계는 현재까지 명확히 밝혀진 것은 없다. 이에 ECR 값 대신에 열충격시 하중지지를 담당하고 있는 것으로 알려진 prior-궤상 두께를 기준으로 취화도를 결정하는 방법이 ANL에서 제안되었는데[8] LOCA 시험 중 열충격 파단을 막기 위해서는 0.9% 이하의 산소를 포함한 궤상의 두께가 최소 0.15mm 이상 필요하며 LOCA 시험 후 피복관 취급시 부서지지 않을 정도로 건전성을 유지하기 위해서는 0.7% 이하의 산소를 포함한 궤상의 두께가 최소 0.3mm 이상 필요하다고 제안하고 있다. 그림 7은 잔존 궤상의 두께와 산화량간의 관계식을 나타낸 그래프이다. 산화량이 증가할수록 잔존 궤상의 두께가 감소하는 것이 명확히 드러나고 있으며 산화량이 25% 이상에서 파단이 일어나서 기존의 17% 파단기준이 충분히 보수적인 값을 보여주는 반면, 잔존 궤상의 두께가 0.3mm 이하일 때 파단을 일으키는 것은 뚜렷이 보이고 있다. 이에 기존의 ECR 기준보다는 잔존된 궤상 두께가 취화도를 평가하는데 효율적임을 보이고 있지만 현재 실험환경이 피복관의 열수축 변형이 자유로운 비구속 환경에 있음을 감안하여 수용 가능한 ECR 값이 높아진 점도 간과할 수 없다[9].

4. 결론

모사된 LOCA 환경에서 지르칼로이-4 피복관의 열충격 파단거동을 연구한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 지르칼로이-4는 1000°C 이상부터 활성화 거동에 의하여 열충격 파괴거동을 보이며 활성화 에너지는 Baker-Just의 활성화 에너지와 비슷한 45,500cal/mol K를 보이고 있다.
2. 산화량에 의한 취화도 평가결과 지르칼로이-4는 17% ECR 보다 높은 25% 이상에서 파단이 일어나는 보수성을 보이며 링압축 시험에서도 같은 경향이 보이고 있다. 이는 실험 환경이 피복관의 수축이 자유로운 비구속 상태에 기인한 것으로 보인다.
3. 비구속 상태의 지르칼로이-4의 취성기준은 산화량에 근간을 둔 ECR값이나 산화층 두께 분율 보다 궤상 두께에 의한 기준이 열충격 취화도를 잘 나타내고 있다.

5. 후기

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업인 “지르코늄신합금 핵연료 피복관 개발”과제의 일환으로 수행되었음.

6. 참고문헌

- [1] E. J. Erbacher and S. Leistikow, ASTM STP 939, p.457 (1987)
- [2] 10CFR 50.46, Nuclear Regulatory Commission
- [3] H. M. Chung and T. M. Kassner, NUREG / CR-1344 (1980)
- [4] W. J. Leech, Proc. of the Topical Meeting on LOCA Fuel Safety Criteria (2001)
- [5] L. Baker and L. C. Just, ORNL-4758 (1972)
- [6] R. G. Ballinger, W. G. Dobson and R. R. Biederman, Journal of Nuclear Materials 62 213 (1976)
- [7] D. O. Hobson and P. L. Rittenhouse, ORNL-4758 (1972)
- [8] H. M. Chung, A. M. Garde, and T. F. Kassner, ASTM STP 681, p.600~627 (1979)
- [9] H. Uetsuka and F. Nagase, Enlarged Halden Programme Group Meeting (2001)

Table. 1 Test matrix of this study

온도(°C) 시간(s)	1000	1050	1100	1125	1150	1175	1200	1225	1250
500	V		V	V	V	V	V		V
1000	V	V	V	V	V	V	V	V	V
1500								V	
2000	V	V	V	V	V	V	V		V
3000	V	V	V	V	V	V	V		
5000	V		V	V	V				
7000	V		V		V				
10000	V		V						
15000	V								

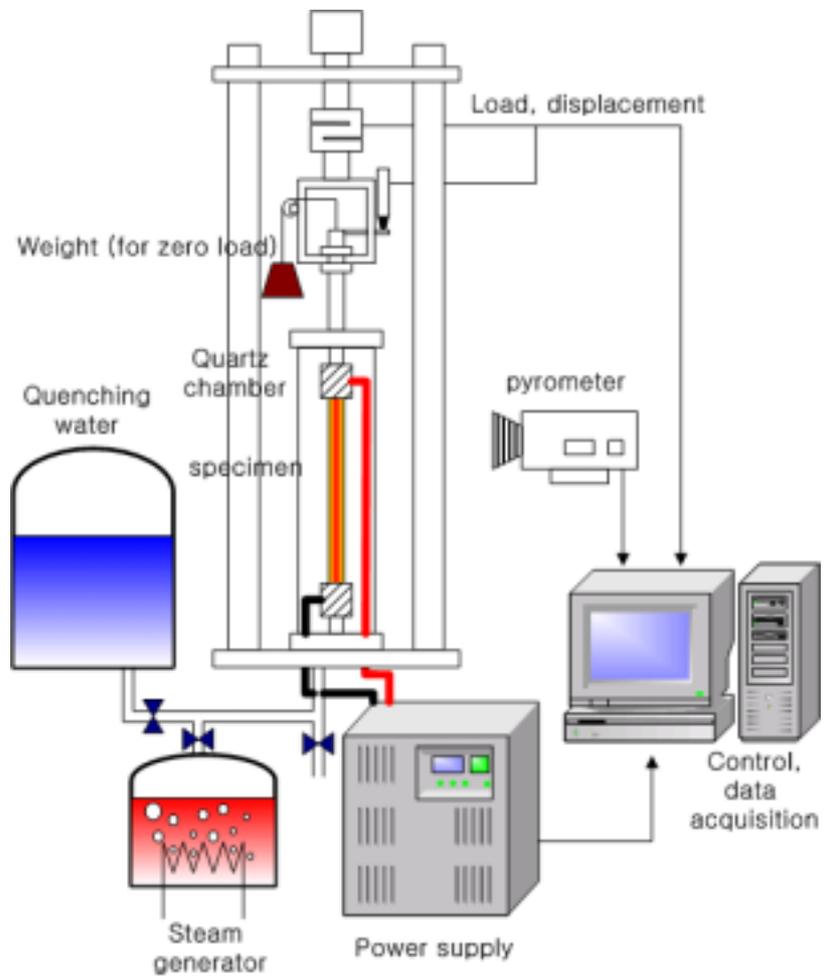


Fig. 1 Experimental setup for LOCA Thermal shock

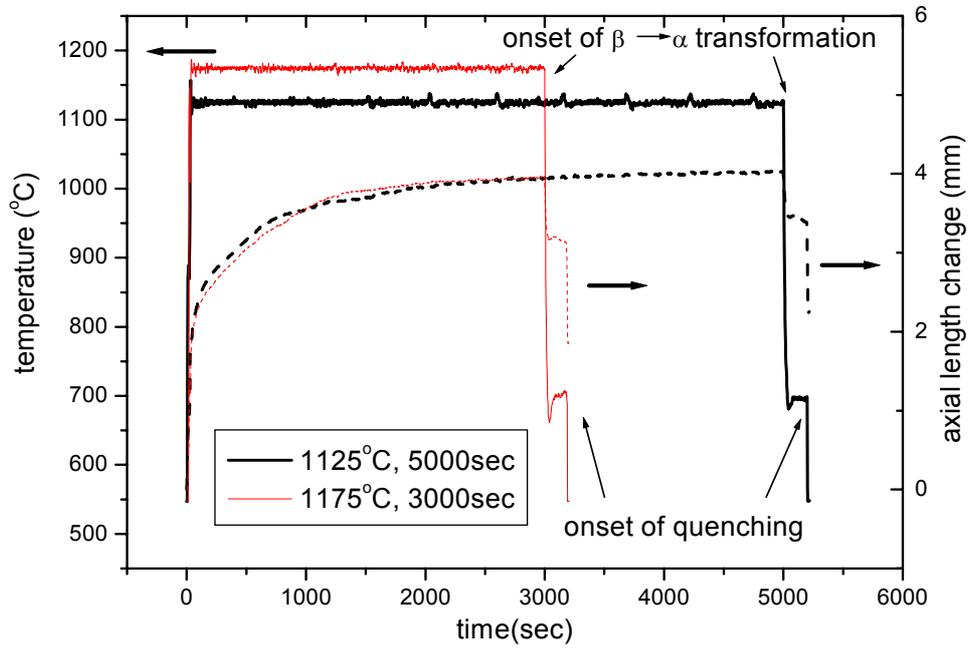


Fig. 2 Temperature and axial length profile during thermal shock test

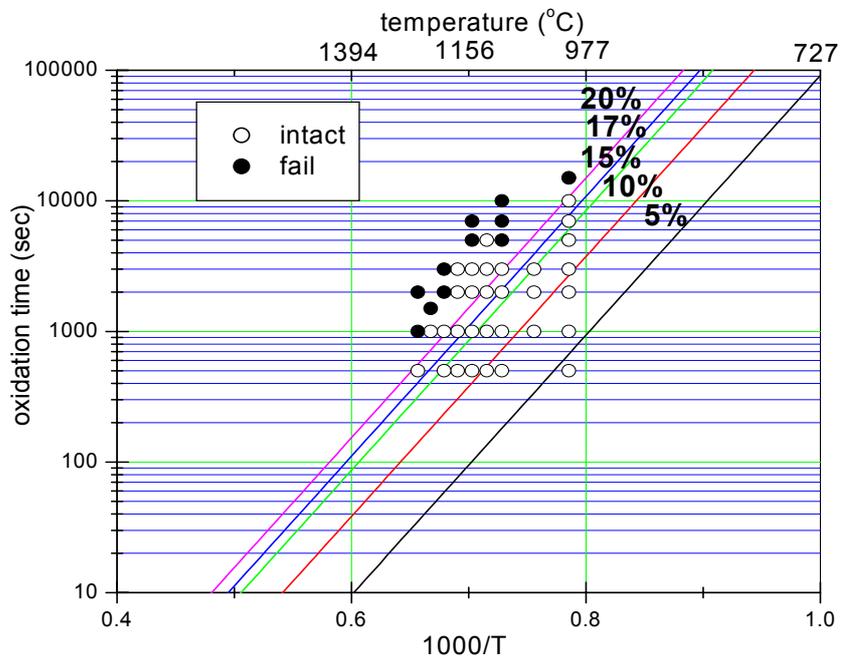


Fig. 3 Failure map of Zircaloy-4 cladding tube in water quenching followed by oxidation

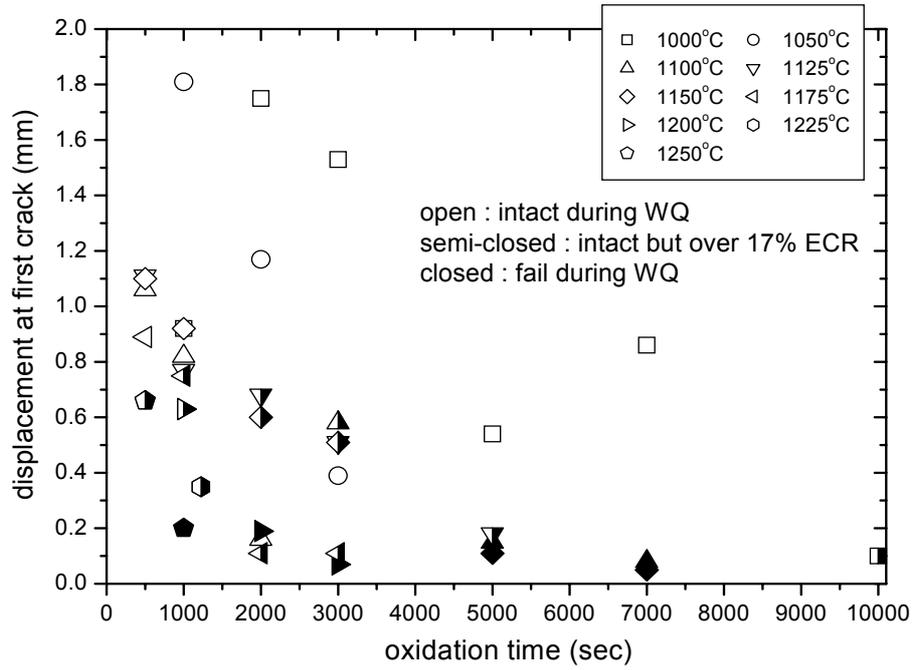


Fig. 4 Ductility evaluated by ring compression test with various oxidation temperature and time

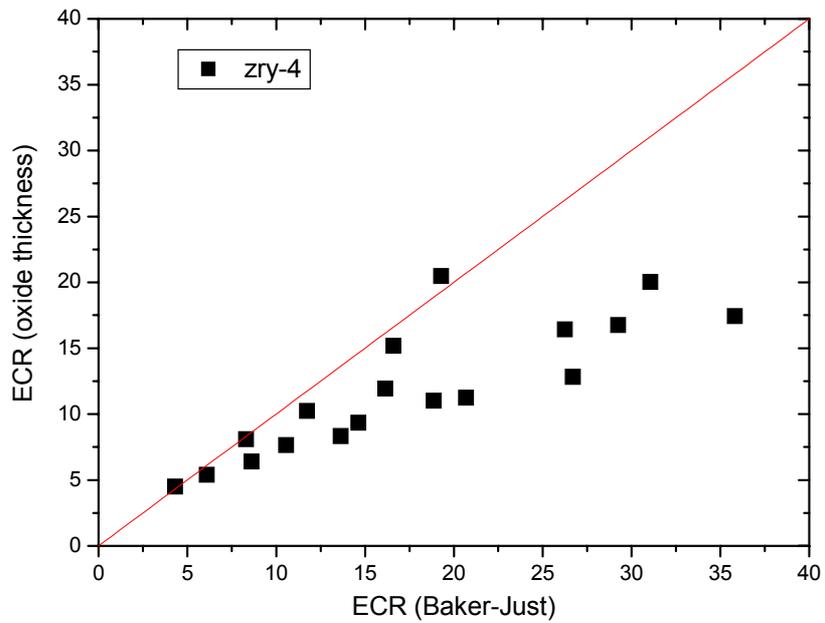


Fig. 5 Comparison of ECR parameter based on oxygen absorption and oxide thickness

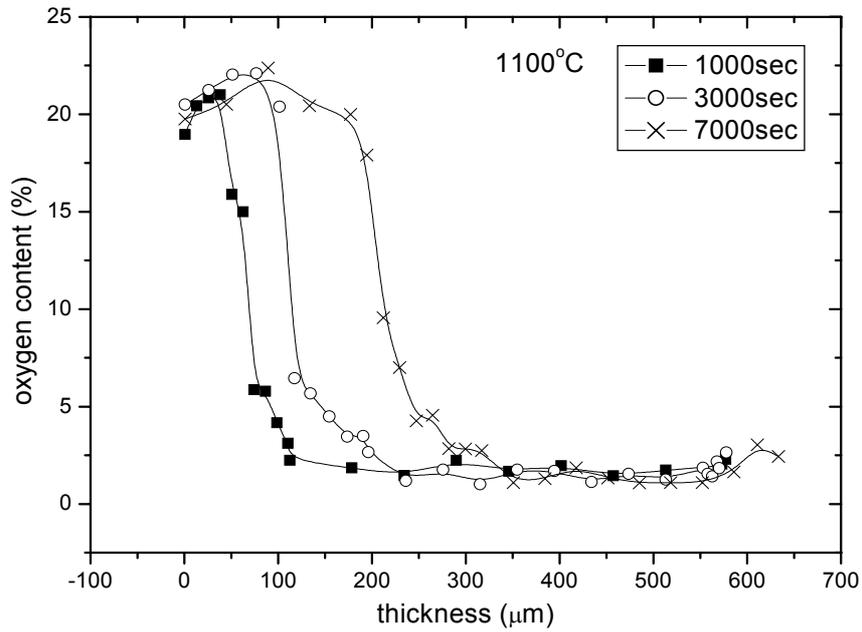


Fig. 6 Oxygen profile along cladding thickness

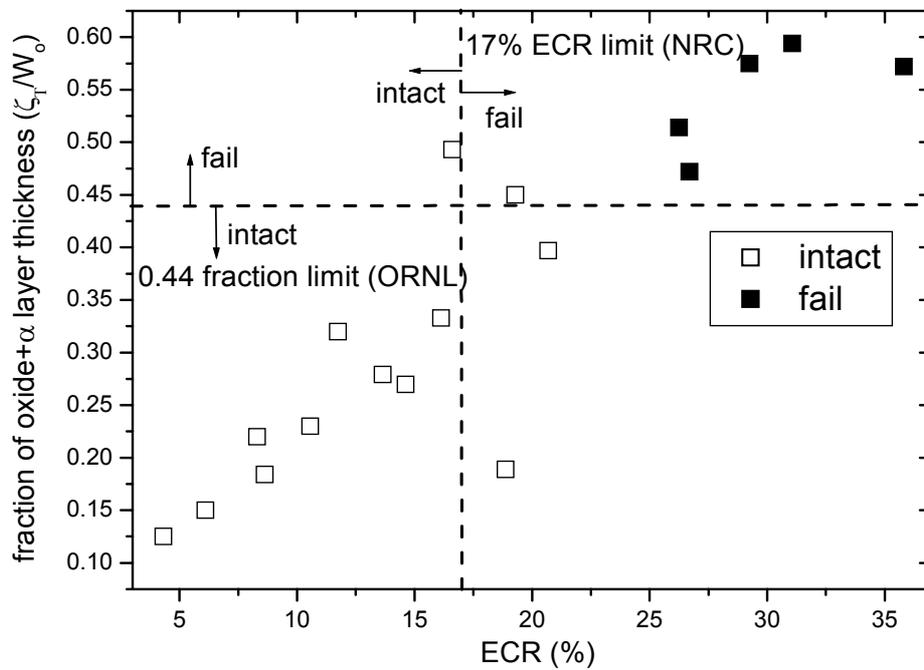


Fig. 7 Relationships between fraction of combined ZrO_2 and stabilized α -layer and ECR parameter

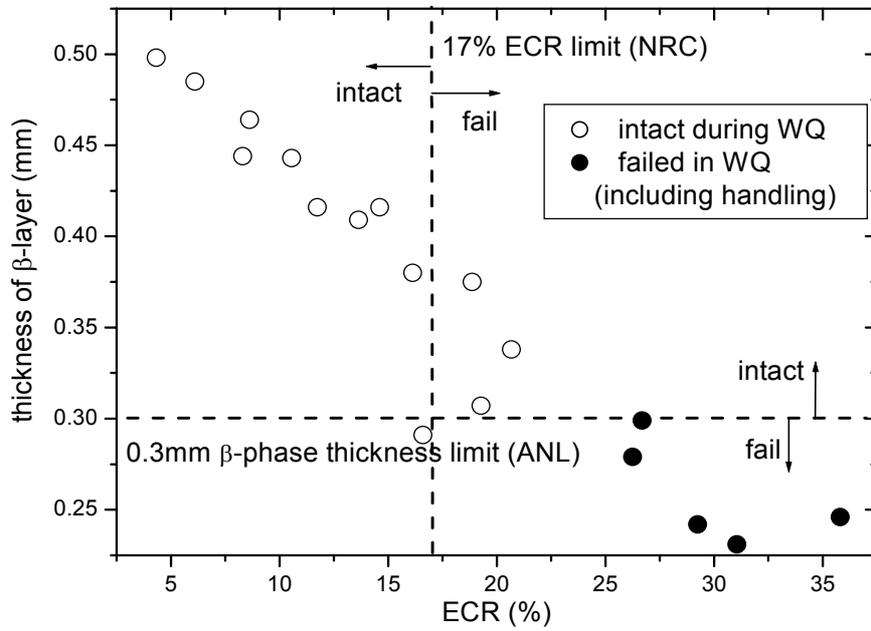


Fig. 8 Relationships between β -layer thickness and ECR parameter