

2003 추계학술발표회

한국원자력학회

반응도사고시 고연소도 핵연료피복관의 거동분석

Behavior Of High Burn-up Nuclear Fuel Cladding During Reactivity Initiated Accident Conditions

김 선기, 이 찬복

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

최근 고연소도 핵연료의 반응도사고에 대한 관심이 부각되면서 사고시 핵연료손상 거동에 관한 국제공동연구가 연구로를 중심으로 활발히 진행되고 있다. 본 논문에서는 프랑스 CABRI 시험프로그램과 일본 NSRR 시험프로그램에서의 핵연료피복관의 기계적 시험결과를 중심으로 소개된다. 현재까지의 두 시험프로그램의 결과로부터 반응도사고시 핵연료피복관의 주요 손상기구는 재료내 수소화물과 관련된 펠렛과 피복관의 기계적 상호작용인 것으로 밝혀졌다. 또한, 핵연료피복관 산화막의 spallation이나 재료내의 국부적인 hydride blister의 존재가 반응도사고시의 핵연료 피복관 손상에 결정적인 영향을 미치는 것으로 나타났다.

Abstract

Recently, international co-works on failure behavior of high burn-up nuclear fuels have been briskly progressing in research reactors. In this paper, the test results of CABRI and NSRR test programs focused on the mechanical properties of fuel cladding during the RIA(Reactivity Initiated Accident) conditions are introduced. According to the results from CABRI and NSRR test program up to now, the primary failure mechanism was clarified to be hydride-assisted PCMI(Pellet Cladding Mechanical Interaction). In addition, it turns out that the oxide spallation and local hydride blister of cladding play deleterious roles in the RIA failure.

1. 서 론

1970년대 이전에 원자로의 급격한 출력상승(power ramping)에 의한 핵연료 손상이 빈번하게 발생하였는데, 이는 핵연료피복관과 UO_2 펠렛과의 상호작용, 소위 PCI(Pellet Cladding Interaction)에 의한 피복관 재료에 가해지는 하중에 의해 취화된 피복관 재료의 손상이 발생하는 것으로 알려져 왔고, 그 후 급격한 출력상승을 억제하면서 이러한 핵연료 손상문제도 해결이 되어왔다. 그러나, 최근에 원전운전이 60,000 MWd/tU 이상의 고연소도 운전이 되면서 기존의 저연소도(33,000~40,000 MWd/tU)에서 해결되었던 급출력상승에 의한 핵연료 손상이 최근의 고연소도 핵연료에서 반응도사고(RIA, Reactivity Initiated Accident)에 대한 관심이 고조되면서 이에 대한 국제적인 공동 시험프로그램이 몇몇 연구로에서 진행되고 있으며 산업계와 연계되어 연구가 수행되고 있다. 프랑스의 EDF에서는 반응도 사고에 대한 안전을 보장할 수 있는 몇몇 인자를 설계목적으로 French Nuclear Safety Authorities(DSIN)에 제안하기도 하였는데 그 내용은 아래와 같다[1].

- 정상운전중의 피복관의 산화막 두께는 100 μ m를 초과하지 않아야 한다.
- 최대 피복관 온도는 700 $^{\circ}$ C를 초과하지 않아야 한다.
- 엔탈피(enthalpy) 증가는 60 cal/g을 초과하지 않아야 한다.
- 중간높이(mid-height)에서의 펄스의 폭(pulse width)은 30 ms 보다 커야 한다.

위의 인자들은 반응도사고시의 핵연료 피복관의 파손 규제기준(regulatory criteria)은 아니고 단지 핵연료 파손이 발생하지 않음을 보장해줄 수 있는 하나의 보수적인 기준으로 간주되고 있다.

RIA 사고시에는 아래의 2개의 mechanism이 서로 작용하며 핵연료 피복관에 기계적 하중을 가하게 되어 피복관의 파손을 가져오게 된다.

- 펠렛/피복관 상호작용 (PCMI, Pellet Cladding Mechanical Interaction)
- 핵연료봉내 압력상승(internal over-pressurization)

펠렛과 피복관의 상호작용에 의해 피복관의 변형을 가져오게 되고, 피복관이 산화층이나 혹은 재료내의 수소화물에 의해 취화된 상태이므로 심각한 파손이 야기될 수 있으며 또한 핵연료 펠렛이 파편(fragmentation)으로 잘게 부서지며 파손부위를 통해 냉각수로 퍼져나갈 수 있게 된다. 물론 이 과정에서 핵분열생성기체가 냉각수로 유출됨은 물론이다. 이러한 과정을 도식적으로 그림 1에 나타내었다.

2. 본 론 : RIA 시험프로그램

1980년대 중반 이후 26,000-65,000 MWd/tU 범위의 연소도를 갖는 PWR 핵연료, BWR 핵연료 및 PWR-MOX 핵연료를 대상으로 반응도사고 모사시험이 수행되어

왔다. 이러한 시험은 Na을 냉각재(280°C, 0.5 MPa)로 사용하는 프랑스의 CABRI 실험로 및 stagnant water를 냉각재(25°C, 0.1 MPa)로 사용하는 일본의 NSRR 실험로에서 주로 수행되었다.

2.1 PROMETRA 시험프로그램(1992-1997)

PROMETRA 시험프로그램[2,3]은 RIA 사고시의 핵연료 피복관의 기계적 특성에 관한 시험프로그램으로서 총 150회 이상의 시험이 포함되어 있으며 다양한 산화막의 두께를 갖는 미조사 및 조사 핵연료피복관에 대한 hoop시험 및 축방향 인장시험(axial tensile test)이 25-1100°C의 온도영역에서 수행되었다. 이때 변형률(strain rate)은 0.01, 0.2, 5/s로 변화시켜가며 변형률에 대한 영향도 평가하였다. 피복관 파열시험의 경우 350°C까지 서서히 가열한 후 0.015/s의 변형률로 수행되었다. 본 시험영역에서는 산화막의 두께가 80 μ m까지는 산화막의 영향은 그다지 크지 않는 것으로 평가되었고 산화막의 spallation 현상이 발생하지 않는 한 그러한 영향은 반응도사고 평가 시 무시할 수 있는 것으로 분석되었다. Zircaloy-4에 대한 온도에 따른 UTS(Ultimate Tensile Stress)의 시험결과를 그림 2에 나타내었다.

2.2 CABRI 시험프로그램

CABRI 시험프로그램[2-4]의 결과에 의하면 위 두 mechanism중 PCMI가 핵연료 피복관 파손의 주요 mechanism이며 피복관내 수소화물에 의한 취화가 파손의 결정적인 원인인 것으로 밝혀졌다. PCMI는 핵연료의 열팽창이나 혹은 핵분열 기체에 의한 swelling에 의해 부피가 팽창하면서 펠렛과 피복관이 접촉을 하게 되고 이때 피복관에 가해지는 하중이 조사취화나 혹은 수소취화에 의해 연성이 급격히 저하된 피복관이 그러한 하중을 견디지 못할 경우에는 파손이 발생하게 된다. 또한 CABRI 시험프로그램의 결과에 의하면 64,000 MWd/tU 연소도까지는 원자로 내에서의 피복관 산화막의 spallation이나 국부적인 hydride blister가 존재하지 않는 한 피복관 파손이 발생하지 않았다.

2.3 NSRR 시험프로그램

NSRR 시험프로그램[5,6]에서는 160 mm 길이의 low-tin Zircaloy-4를 대상으로 피복관 파열실험이 수행되었는데, 피복관 외부에 집중되어 석출되는 hydride rim이 피복관 재료의 기계적 성질에 미치는 영향을 평가하기 위해 수소침투가 안된 Zircaloy-4, 균일하게 수소화물이 분포된 시편 및 hydride rim을 형성시킨 시편을 대상으로 하였고 600K에서 100-1100 ppm 까지의 수소주입 실험이 수행되었다. 파열시험시의 가압(pressurization)은 0.002-3 MPa/ms의 속도로 150 MPa까지 가압하

였으며 상온 및 620K에서 파열시험이 수행되었다.

먼저 상온에서의 파열시험의 경우 그림 3에서 보듯이, 시편내의 수소함유량이 증가할수록 파열시까지 견디는 시간(survival time)은 감소하였다. 수소주입을 하지 않은 시편과 균일하게 수소화물이 분포된 시편은 파열거동에 있어서 큰 차이를 보이지는 않았으나 hydride rim을 형성시킨 시편의 경우 가압이 시작된 후 약 25 ms 후에 파손이 발생하였으며 이때 파열시의 압력은 100 MPa 미만이었다. 수소주입을 하지 않은 시편과 균일하게 수소화물이 분포된 시편의 경우 파열시의 압력이 120-130 MPa 임을 감안한다면 hydride rim이 존재할 경우 훨씬 낮은 hoop stress에서도 피복관 파손이 발생할 수 있음을 나타낸 것이고 따라서 hydride rim의 존재는 RIA 사고시 피복관 연성저하에 큰 영향을 미친다는 사실이 밝혀졌다.

620K에서의 파열시험의 경우에도 상온에서와 마찬가지로 시편내의 수소함유량이 증가할수록 파열시까지 견디는 시간은 감소하였다. 그러나 상온에서의 파열시험 결과와는 달리 hydride rim이 존재하는 시편과 그렇지 않은 시편과의 파열압력은 모두 약 70-80 MPa 범위였으며 큰 차이는 나타나지 않았다. 그림 4에서 보는 것처럼 파열시험을 통한 피복관 잔류 hoop strain은 상온 및 620K에서 모두 수소함유량이 증가할수록 낮아지는 것으로 평가되었으며 상온에서는 약 300 ppm 정도의 수소함유량에서 급격한 hoop strain 감소가 나타났으며 620K에서는 약 400-500 ppm 정도의 수소함유량에서 급격한 hoop strain 감소가 나타났다. Hydride rim이 존재하는 시편의 경우, 상온 파열시험에 의한 파손시의 hoop strain은 1% 미만의 아주 낮은 값으로 평가되었다. 심지어 620K에서조차도 파열시험에 의한 파손시의 hoop strain이 역시 1% 미만의 아주 낮은 값으로 분석되었다.

최근의 NSRR 시험프로그램에서 RIA 사고시 낮은 엔탈피에서도 피복관내의 수소화물의 영향으로 인한 PCMI 파손이 발생할 수 있음이 PWR 및 BWR 고연소 핵연료를 대상으로 한 실험에서 밝혀졌다. 이는 CABRI 시험프로그램의 결과와 일치하는 것으로서 현재까지의 CABRI 및 NSRR 시험프로그램의 연구결과로는 RIA 사고시 고연소도 핵연료 피복관의 파손기구는 수소화물의 취화영향과 관련한 PCMI, 소위 hydride-assisted PCMI 인 것으로 결론지어졌다.

시험프로그램에 사용된 PWR 핵연료의 연소도는 50,000 MWd/tU이었고 피복관내의 수소함유량은 400 ppm이었는데 핵연료 엔탈피 증가가 PCMI 파손기준인 110 cal/g 보다 낮은 60 cal/g 이었음에도 불구하고 피복관의 파손이 발생하였다. 또한, BWR 핵연료의 연소도는 61,000 MWd/tU이었으며 피복관내의 수소함유량은 불과 200 ppm이었고 핵연료 엔탈피 증가 역시 PCMI 파손기준보다 낮은 70 cal/g 이었음에도 불구하고 PWR 핵연료와 마찬가지로 피복관의 파손이 발생하였다. 각각의 피복

관 파손에 대한 morphology를 그림 5에 나타내었다. 이러한 결과로부터 기존의 PCMI 파손기준인 110 cal/g는 고연소도 핵연료에서는 적용가능하지 않음을 인식하게 되었고 연소도가 증가함에 따라 PCMI 파손기준을 낮추는 것이 필요하게 되었고 PWR, BWR, ATR MOX 핵연료 및 JMTR 핵연료에 대한 NSRR 시험자료와 CABRI UO₂ 및 MOX 핵연료에 대한 시험자료는 고연소도 핵연료의 PCMI 파손거동을 기존의 저연소도 핵연료에 적용되었던 PCMI 파손기준에 적용시킬 수 없음을 확인시켜 주었다. 이러한 결과는 그림 6에 나타내었는데 연소도가 45,000-50,000 MWd/tU 이상에서는 기존의 PCMI 파손기준인 110 cal/g 이하에서도 파손이 발생함을 확인할 수 있다.

연소도가 60,000 MWd/tU에 근접함에 따라 피복관의 파손이 발생할 수 있는 엔탈피는 점점 낮아져서 약 50-60 cal/g 까지 낮아지게 알 수 있으며 60,000 MWd/tU 이상의 고연소도에서는 시험자료가 아직 확보되지는 않았으나 50-60 cal/g 보다 훨씬 더 낮아져야 함을 예측할 수 있다. BWR 핵연료에 대하여 수소함유량과 피복관 파손의 상관관계를 그림 7에 나타내었는데 피복관내 정상운전중의 수소침투량이 200 ppm만 되어도 PCMI 파손이 일어날 수 있는 핵연료 엔탈피 증가값은 급격히 낮아지게 됨을 알 수 있다.

수소취화 외에 중성자 조사취화의 영향 평가를 위해 조사 핵연료 피복관 및 수소주입된 미조사 핵연료 피복관에 대한 실험결과를 그림 8에 나타내었는데 미조사 핵연료 피복관의 경우 약 400 ppm 정도의 수소침투량에서 파손이 나타나는 반면 조사 핵연료 피복관의 경우에는 약 200 ppm 정도에서도 파손이 발생함을 알 수 있으며 파손시의 피복관 hoop strain이 미조사 핵연료 피복관의 경우에는 약 2-3%인데 반하여 조사 핵연료 피복관의 경우에는 1% 미만의 값을 가지는 것으로 나타났다. 이러한 결과는 PCMI 파손시 피복관의 수소취화 뿐만 아니라 중성자 조사취화도 영향을 미칠 수 있음을 증명하는 것이다.

한편 RIA 사고시 PCMI에 의한 핵연료 피복관의 hoop strain이 측정되었는데 그림 9에서 보는 것 처럼 80 cal/g의 핵연료 엔탈피 값에서 약 0.3-0.4%로 나타났다. PCMI에 의한 피복관 파손을 야기시킬 수 있는 피복관의 변형은 핵분열기체에 의한 swelling 또는 핵연료 펠렛의 열팽창에 의해 발생하게 되는데 NSRR 시험프로그램에서는 핵연료 펠렛의 열팽창에 의해 피복관의 변형이 일어나는 것으로 설명하고 있으며 그림 10에 핵연료 엔탈피에 따른 파손시의 피복관 hoop strain의 관계가 나타나 있다.

NSSR/RIA 시험프로그램에서는 앞으로 다양한 고연소도 핵연료, 일본형 UO₂(45,000-50,000 MWd/tU), 일본 MOX 핵연료(30,000-45,000 MWd/tU), 유럽형

UO₂(70,000–74,000 MWd/tU) 및 유럽형 MOX(49,000–78,000 MWd/tU) 핵연료 및 ZIRLO, NDA, MDA, Zircaloy-2 및 ATR Zry-2 등과 같은 피복관을 대상으로 피복관 파손기준에 관한 실험이 수행될 예정으로 있다. 또한 상온에서 뿐만 아니라 고온 및 고압분위기 하에서의 실험도 수행될 예정이다. 기계적 특성 평가시험으로는 피복관 파열시험 및 ring 인장시험이 현재 준비중에 있다.

3. 결 론

현재까지의 반응도사고시 핵연료피복관의 거동에 관한 시험결과를 토대로 아래와 같은 주요연구 성과가 도출되었다.

- PROMETRA 시험프로그램 결과로부터 핵연료피복관 산화막의 spallation이 기계적 성질 저하에 미치는 영향이 상당히 큰 것으로 나타났다.
- CABRI 시험 결과, 64,000 MWd/tU 연소도까지는 원자로 내에서의 피복관 산화막의 spallation이나 국부적인 hydride blister가 존재하지 않는 한 피복관 파손이 발생하지 않았다.
- CABRI 시험프로그램 및 NSRR 시험프로그램으로부터 반응도사고시의 핵연료파손의 주요 mechanism은 Hydride-assisted PCMI인 것으로 규명되었다.

참고 문헌

- [1] N. Waeckel C. Bernaudat, and B. Salles, *Light Water Reactor Fuel Performance Conference April 10–13*, (2000)
- [2] J. Papin, F. Lemoine, and E. Federici, *Proceedings of the Topical Meeting on RIA Fuel Safety Criteria*, Aix-en-Provence, France 13–15 May pp. 61–81 (2002)
- [3] N. Waeckel C. Bernaudat, and B. Salles, *Light Water Reactor Fuel Performance Conference April 10–13*, (2000)
- [4] N. Waeckel C. Bernaudat, and B. Salles, *Light Water Reactor Fuel Performance Conference April 10–13*, (2000)
- [5] T. Nakamura, H. Sasajima, and H. Uetsuka, *Proceedings of the Topical Meeting on RIA Fuel Safety Criteria*, Aix-en-Provence, France 13–15 May pp. 83–95 (2002)
- [6] T. Fuketa, T. Nakamura, and H. Sasajima, *Light Water Reactor Fuel Performance Conference April 10–13*, (2000)

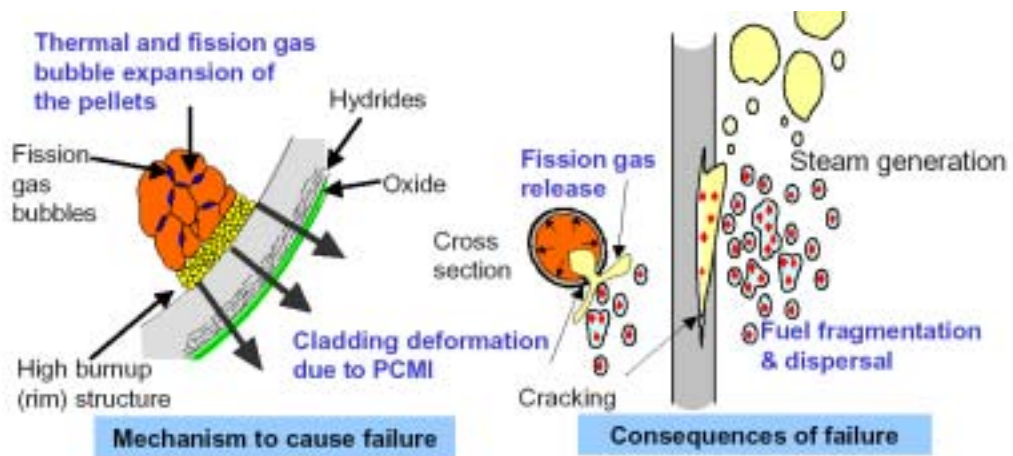


그림 1. 고연소도 핵연료피복관의 RIA 파손거동에 대한 개략도

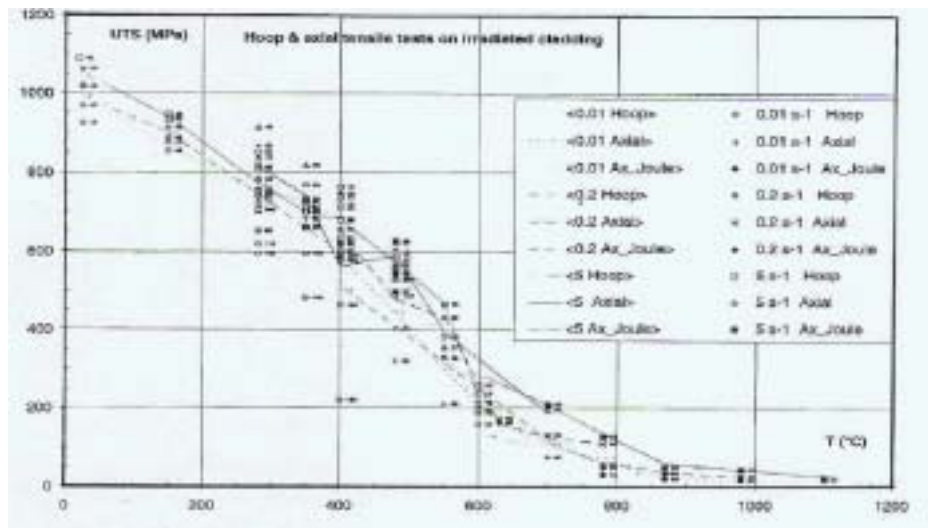


그림 2. PROMETRA 인장시험시험 데이터(UTS vs. temperature)

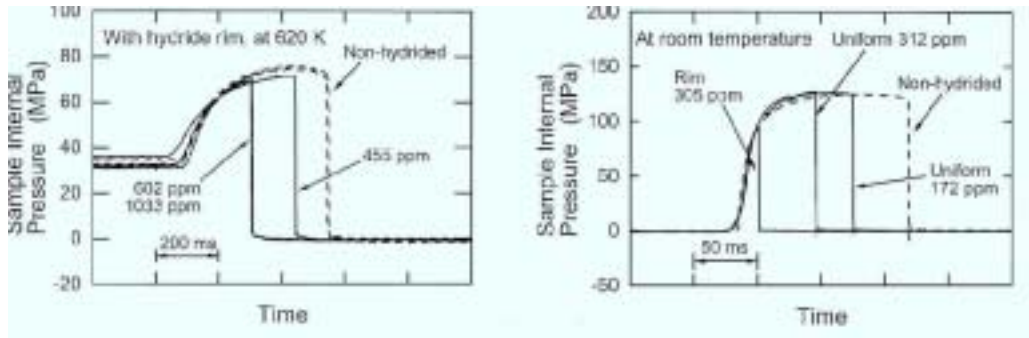


그림 3. 핵연료피복관의 burst test 시험 결과 (상온, 620K)

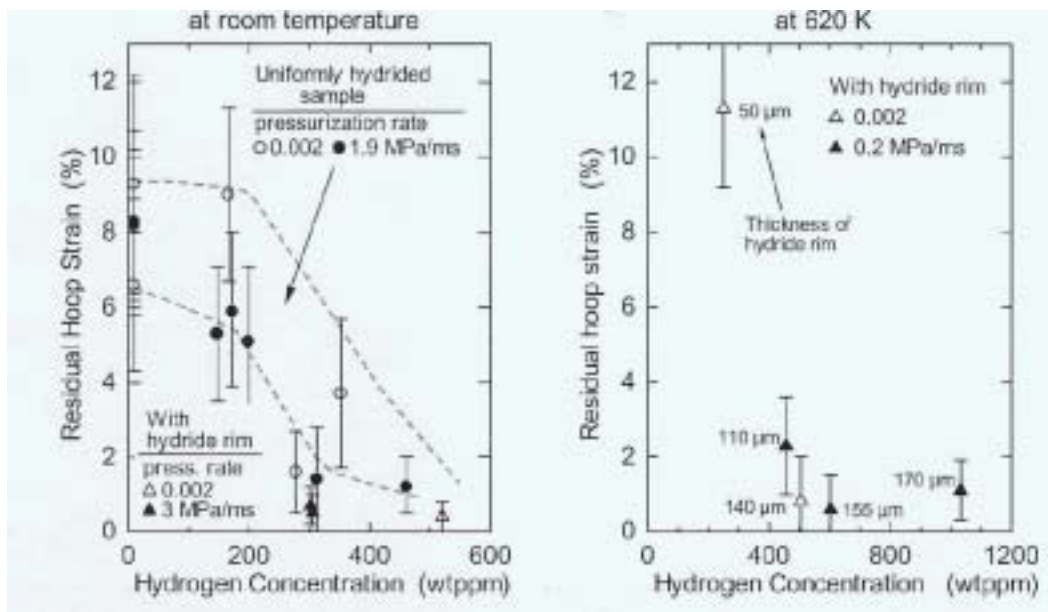


그림 4. 핵연료피복관내 수소함유량에 따른 잔류 hoop strain의 변화 (상온, 620K)

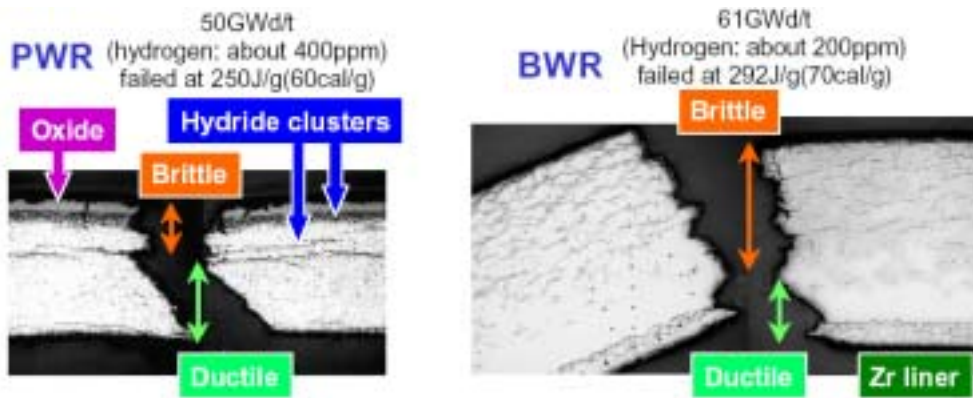


그림 5. 고연소도 핵연료 피복관의 RIA 파손 거동 (NSRR 시험프로그램)

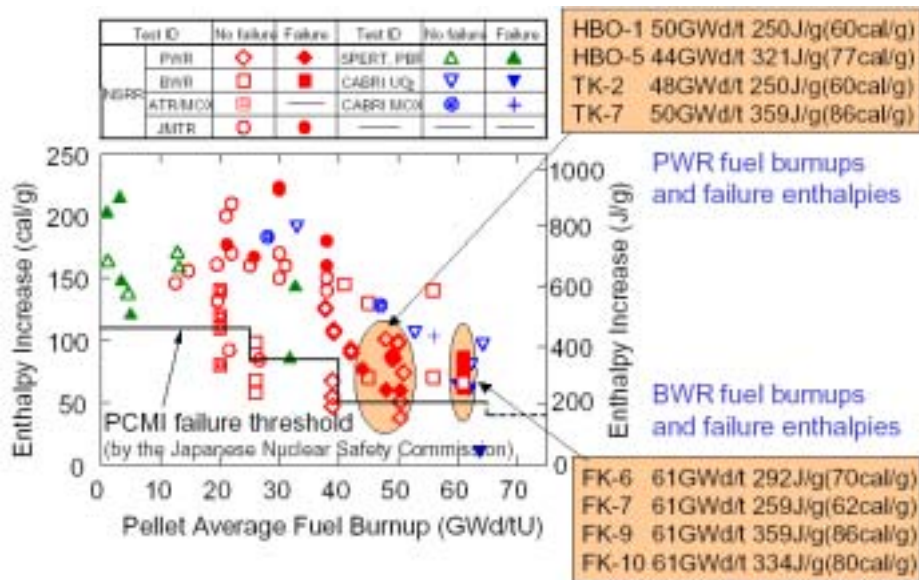


그림 6. 연소도 증가에 따른 PCMI 파손 threshold 값의 변화 (NSRR 시험프로그램)

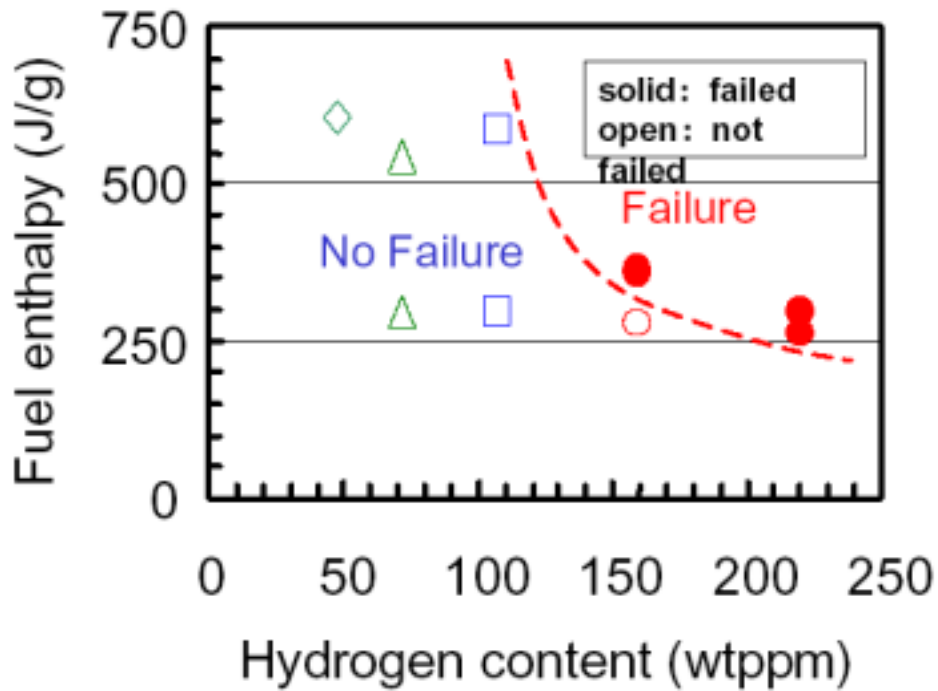


그림 7. BWR 핵연료에 대한 수소함유량과 피복관 PCMI 파손과의 상관관계 (NSRR 시험프로그램)

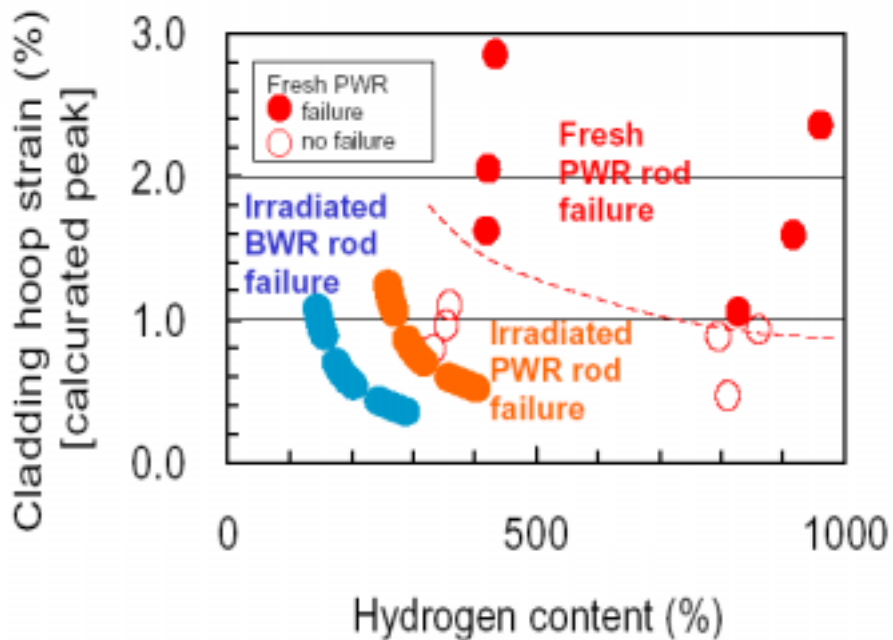


그림 8. 수소함유량에 따른 조사 핵연료 피복관 및 미조사 핵연료 피복관에 대한 hoop strain 거동 (NSRR 시험프로그램)

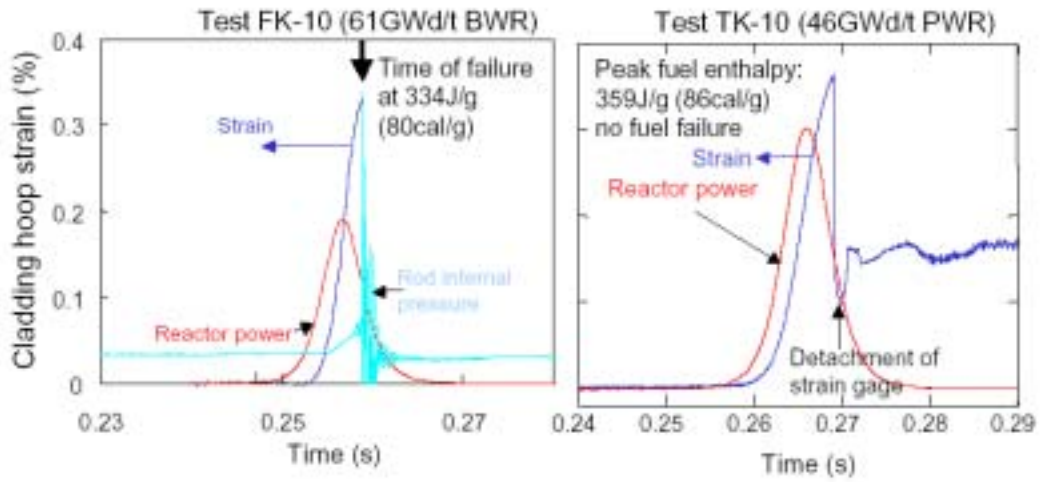


그림 9. RIA 사고시 PCMI에 의한 핵연료 피복관의 hoop strain 측정 결과 (NSRR 시험프로그램)

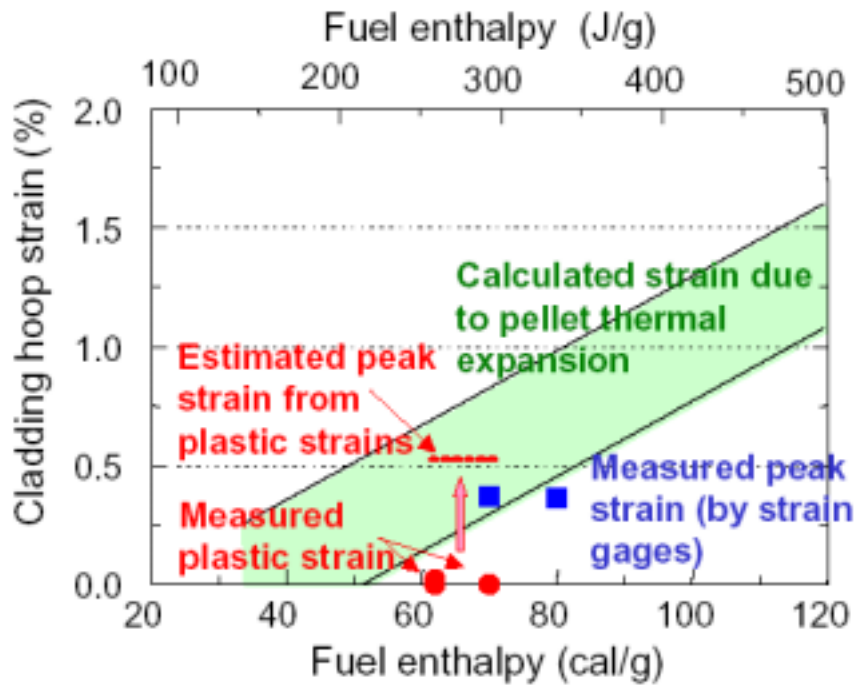


그림 10. PCMI 파손시의 핵연료 엔탈피와 피복관 hoop strain와의 상관관계 (NSRR 시험프로그램)