

'99 춘계 학술발표회 논문집
한국원자력학회

조사후시험 자료를 통한 핵연료봉 수소화 손상 분석

Hydriding Failure Analysis of Nuclear Fuel Based on PIE Data

김 용수

한양대학교
서울특별시 성동구 행당동 17

전 휘수, 박 현택

한국전력공사
서울특별시 강남구 삼성동 167

전 용범, 유 길성, 김 은가, 민 덕기

한국 원자력연구소
대전시 유성구 덕진동 150

요 약

국내 원자력발전소에서 연소중 손상된 2개의 핵연료봉에 대한 손상 원인을 규명하기 위해 핫셀 조사후시험을 수행하였고 이를 통해 각각의 연료봉 손상 과정 중 1차의 내부 수소화와 2차 수소화에 의한 손상이 일어났다는 것이 확인하였다. 이번 연구에서 이들 각각의 수소화 손상의 기본적인 반응 과정을 검토하였고, 피복관의 내외면의 산화막 두께와 핵연료 펠렛의 재구조화등과 같은 조사후시험 자료 분석을 통해 이들 수소화 손상 과정을 추적 분석하였다.

Abstract

Failure causes of the two fuel rods of a domestic nuclear power plant had been investigated by using PIE technique. The destructive and physico-chemical examinations revealed that the clad hydriding phenomena had caused the rod failures primarily and secondarily in each case. In this study the basic mechanisms of the primary and the secondary hydriding failures are reviewed, PIE data such as cladding inner and outer surface oxide thickness and the restructuring of fuel pellets are analyzed. The results strongly support that the hydriding processes, primary and secondary, had played critical roles in the respective fuel rods failures.

1. 서 론

경수로에서 자주 발생하는 핵연료 손상 중 하나가 수소화 손상 혹은 수소 침투 과정에 관련된 손상이다. 가동중인 원자로에서 핵연료 요소에 결함이 있을 때, 피복관은 더 이상 핵분열에 의해 연소되는 핵연료와 냉각수 사이의 차단막으로 작용하지 않는다. 이렇게 핵연료가 손상되면 발전 설비에 안전성과 경제성에 악영향을 미칠 수 있다. 때로는 1차 손상에 의해 심각한 2차 손상이 유발될 수 있다.

몇 년전 한국형 원형 표준 원자로 시운전 중 2개의 핵연료가 손상되었다. 조사후시험에서, 연료봉 하나는 내부 수소화가 그리고 다른 하나는 2차 수소화에 의한 추가적인 손상이 일어난 것으로 밝혀졌다. 이 연구는 이러한 손상 원인 평가를 뒷받침하기 위해 조사후시험 자료 분석을 통해 이들 수소화 손상 과정을 추적 분석하였다..

2. 조사후시험에 의한 손상 핵연료 봉 실험

손상된 2개의 핵연료봉이 발전소의 저장조로부터 KAERI의 조사후시험 시설로 옮겨진 후 핫셀 비파괴 시험, 핫셀 파괴 시험, 그리고 화학 분석 시험이 수행되었다. 핫셀에서 먼저 망원경을 이용하여 손상 연료봉의 모든 부분을 정밀 조사하였고, 피복관의 내면과 외면의 산화막 두께, UO_2 펠렛의 구조 변화, 그리고 피복관에서의 수소 함유량을 측정하였다.

3. 결과 및 토의

핵연료봉 D103-K2의 1차 (내부) 수소화 손상

핵연료봉 내부의 수소 불순물은 궁극적으로 초기의 화학적 상태에 무관하게 지르칼로이 피복관을 수소화 시키게 되고 국소적인 대량 수소화는 hydride blisters로 귀결된다. 이때 부피의 변화는 핵연료봉의 외부에서 시각적으로 확연히 드러난다. 그리고 기계적인 특성을 저하시켜 균열이 쉽게 진행되고, 결국 국소적인 균열 진행 후에 관통 결함으로 발전하게 된다. 내부 수소화에 의한 전형적인 핵연료봉 손상에서 주요 수소 공급원은 UO_2 연료 펠렛 내의 잔존하는 습기이다. 1차 내부 수소화 반응에서, 피복관 내면의 잔존하는 습기(증기)에 의한 산화막과 산화의 범위, 즉 연료봉 전체에서의 산화막 두께 분포는, 이 경우 외부로부터의 산화제 공급이 없고 지르칼로이 산화가 활성화 반응이기 때문에 연료봉의 축방향을 따른 온도 분포를 따른다. 그림 1a) 와 1b)는 핵연료봉 D103-K2에서 피복관 안쪽과 바깥쪽의 산화막 두께가 핵연료 성능 코드에서 예상한 온도 분포와 잘 일치한다는 것을 보여준다 [1]. 코드 모사는 해당 원전의 해당 주기 초기 노심 설계 자료(NDR, Nuclear Design Report)에 근거한다 [2]. 특히 시운전 중인 노심 핵연료 펠렛 내부의 고온과 습기가 풍부한 조건에서의 산화 환경은 펠렛의 미세 구조의 빠른 변화를 유발한다 즉, grain을 조기 성장시키거나 화학 당량 등을 변화시킨다. 이러한 현상은 코드에 의해 예상된 핵연료 중심의 온도 분포와도 일치한다 (그림 1c) 와 그림 2).

핵연료봉 B208-R8의 2차 수소화 손상

때때로 작은 1차 결함은 대량의 2차 수소화 형성에 이르게 한다. 초기 단계에는 냉각수가 결함 부위를 통해 핵연료봉 내부로 유입되고 핵연료의 높은 온도로 인해 급격히 수증기화 된다. 곧 수 시간 혹은 수 일에 걸쳐 연료봉 내부와 외부의 압력이 같아지게 되며 봉내부의 수증기는 지르칼로이 피복관 내부를 산화시키면서 반응 부산물로 수소를 방출한다. 이와 같이 수증기가 핵연료와 피복관 사이의 갭에서 반응하면서 시간이 지남에 따라 수증기의 양은

줄어드는 동안 수소 농도는 지속적으로 증가한다. 따라서, 갭 안에서의 H_2/H_2O 의 비율은 급속히 증가한다. 2차 수소화 반응에서는 갭 안의 수증기 분자의 확산이 요구되는데, 즉 산화가 지속될 수 있도록 연료봉의 축을 따라 1차 결합 부위로부터 계속적으로 수증기가 공급되어야 한다. 이때 수증기의 공급이 원활하지 않을 경우 H_2/H_2O 의 비율이 계속 높아져 어떤 높이에서 임계치를 초과하고 가속 수소화에 대한 조건이 만족된다면 (보호막 역할의 산화막의 손상이나 표면의 결함과 같은 것 등) 피복관의 대량 수소화로 진행되게 된다. 이때의 내부 표면 산화는 일반적으로 1차 결합 부분에서 가장 두껍고 1차 결합 지점에서 멀어질수록 점점 줄어드는 것으로 이해될 수 있다. 그러나 실제로는 지르칼로이 산화 과정에서 온도가 가장 중요한 역할을 하기 때문에, 내부 표면 산화막의 두께는 축 방향 온도 분포에 따르게 된다. 핵연료 성능 코드는 온도 분포가 중간 부분 위쪽에서 최고치를 갖는다는 것을 보여주고 있고 그림 3은 내부 산화막의 두께가 1차 결합 부분에서 점진적으로 줄어들지 않고 축 방향 온도 분포에 따르고 있는 것을 보여주고 있다. 이러한 산화 분포와 재구조화한 펠렛 실험의 결과는 연료봉의 축방향 출력 분포와 일치한다.

향상된 산화와 현저한 grain 크기 증가

결함부위 주변의 산화막이 다른 영역 보다 더 두꺼운 것을 그림 1과 3에서 볼 수 있다. 지르코늄 합금의 산화 거동은 높은 H_2/H_2O 비율을 가지는 수소 분위기에서 더욱 증진 되는 것으로 알려져 있다. 결함 주변에서의 특이한 산화막 두께는 이러한 수소 농축 환경에 의해 기인되어진다 (그림 5).

표면 안쪽에서 수mm의 현저한 columnar grain growth가 관찰되어진다 (그림 2, 3, 6). 이러한 재결정은 증기 농축 환경이며 고출력으로 가는 경우에만 발견되어진다. 이것은 UO_2 가 수증기 분위기 아래에서와 같은 산화 분위기에서 더욱 가속화 된다는 것과 산소의 펠렛 matrix를 통한 확산은 표면에서 반경 중심 쪽으로 갈수록 제한된다는 사실로 이해될 수 있다. 실제로 산소 분위기에서의 특이한 grain growth는 펠렛에서의 UO_{2+x} 의 stoichiometric 변화를 같이 수반된다 (그림 7).

4. 결 론

PIE 자료 분석은 D103-K2 연료봉이 내부 수소화에 의해 손상되었고, B208-R8 연료봉은 이차 수소화에 의해 추가적인 손상을 입은 것으로 확인하였다. 또한 이 조사후시험 자료는 수소화에 의해 증가되는 부식거동과 이차수소화에서의 H_2/H_2O 의 확실한 임계비와 같은, 손상 연료에 대해 제안되어진 거동들을 뒷받침해 준다.

참고문헌

- [1] M.E. Cunningham and C.E. Beyer, NUREG/CR-3907, PNL-5178, Pacific Northwest Laboratory (1984)
- [2] KAERI and ABB/CE, Nuclear Design Report for Yonggwang Unit 4 Cycle 1, Rev. 0 (1995)
- [3] B.J. Lewis, F.C. Inglesias, D.S. Cox, and E. Gheorghiu, *Nucl. Technol.* **92** (1990) 353-362
- [4] I. Amato, R.L. Colombo, and A.M. Protti, *J. Amer. Ceram. Soc.*, **46** (1963) 407

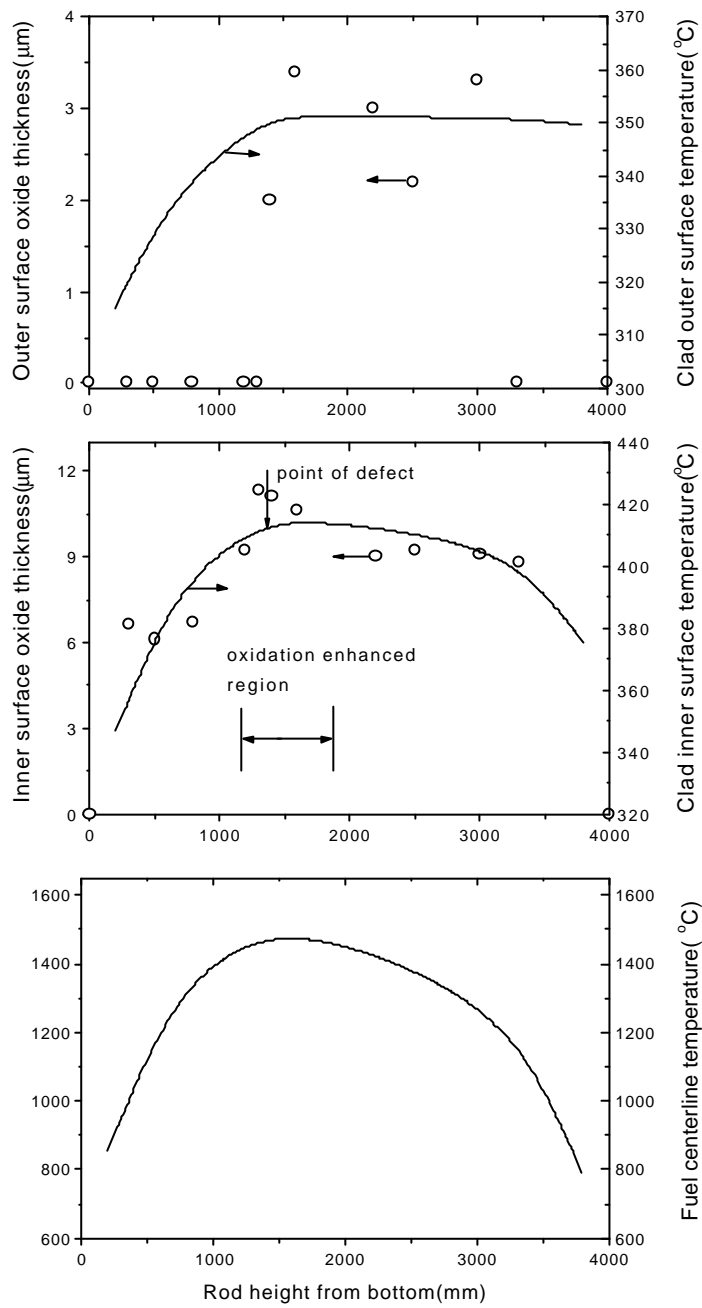


Figure 1. Oxide Thickness Profile and Fuel Centerline Temperature in Failed Fuel Rod D103-K2

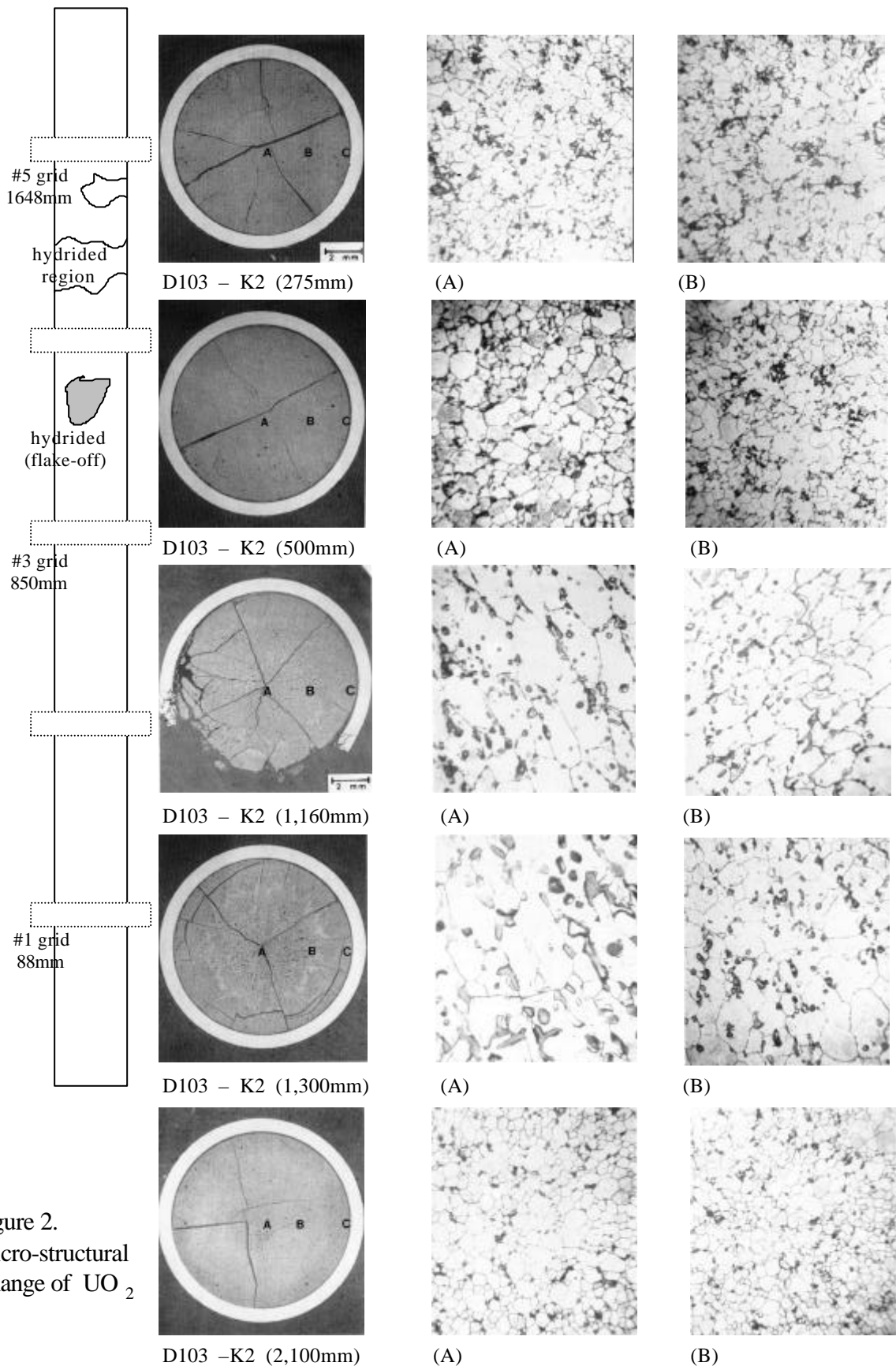


Figure 2.
Micro-structural
Change of UO_2

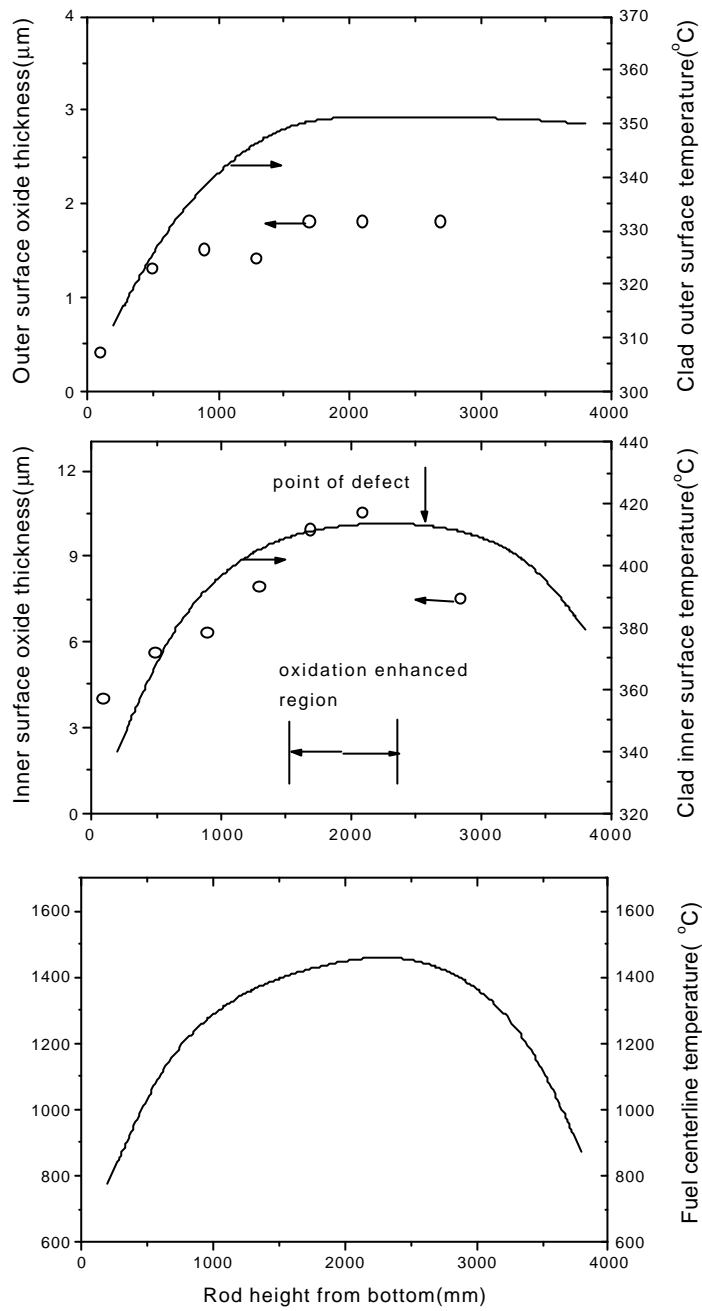


Figure 3. Oxide Thickness Profile and Fuel Centerline Temperature in Failed Fuel Rod B208-R8

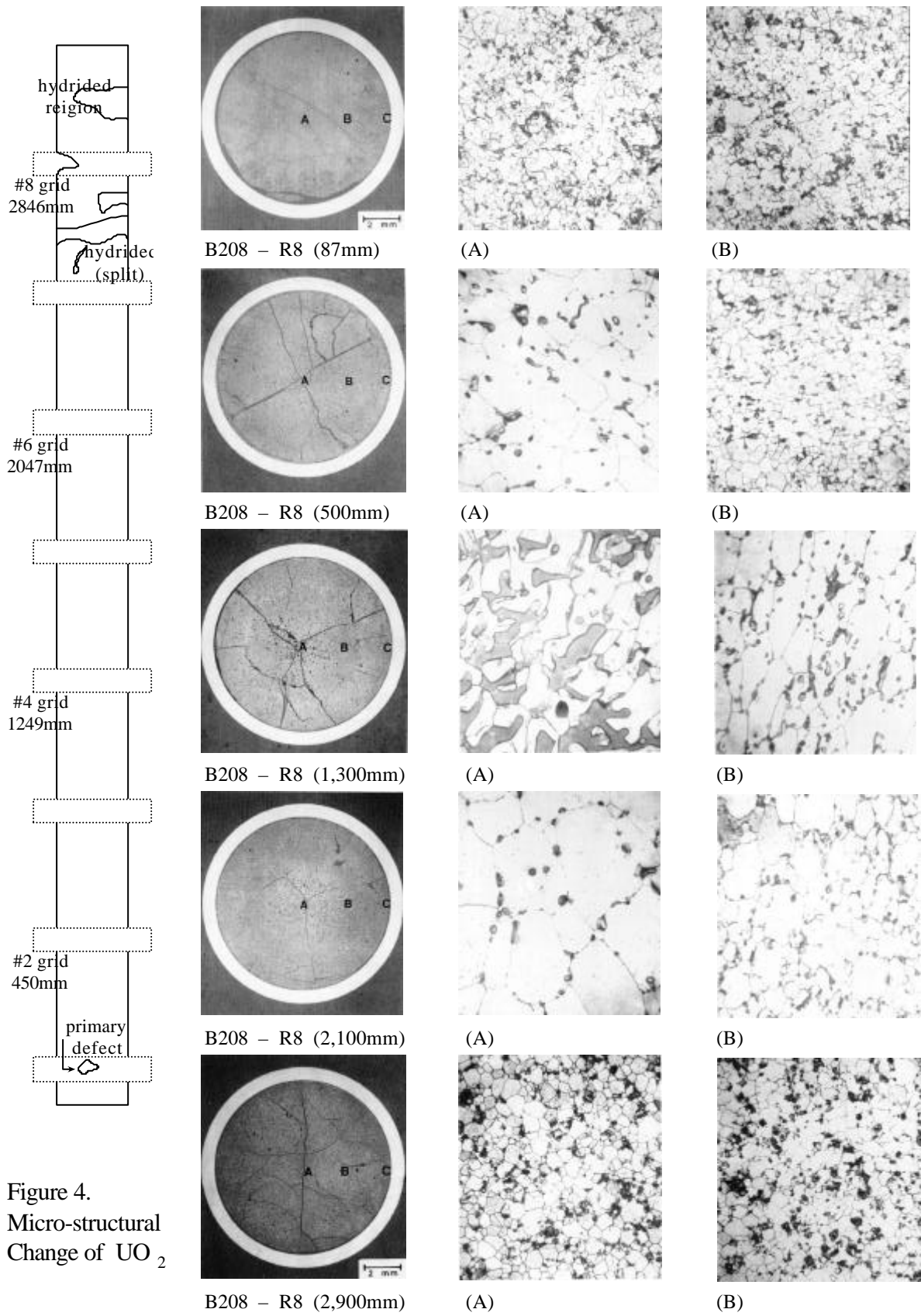


Figure 4.
Micro-structural
Change of UO_2

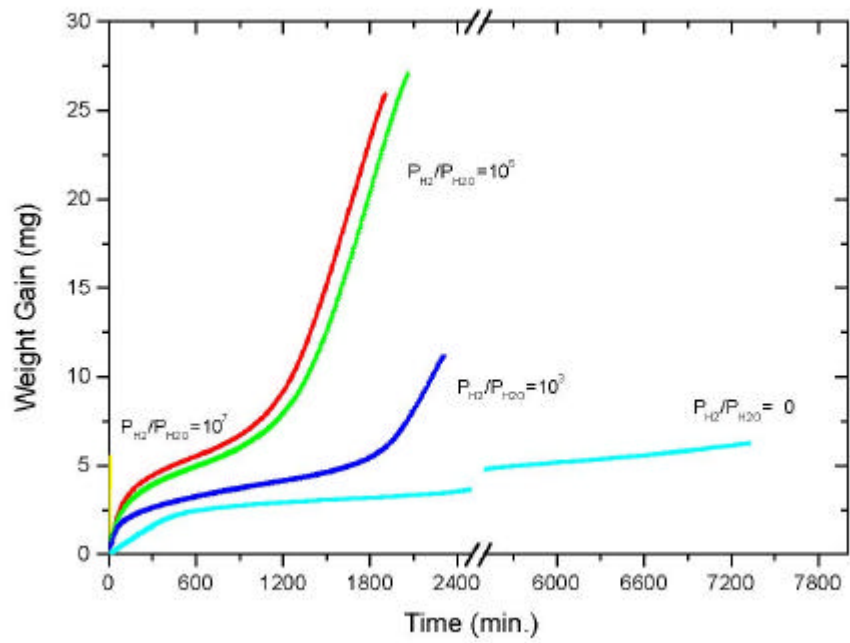


Figure 5. Zircaloy Oxidation Enhancement in Hydriding Environment

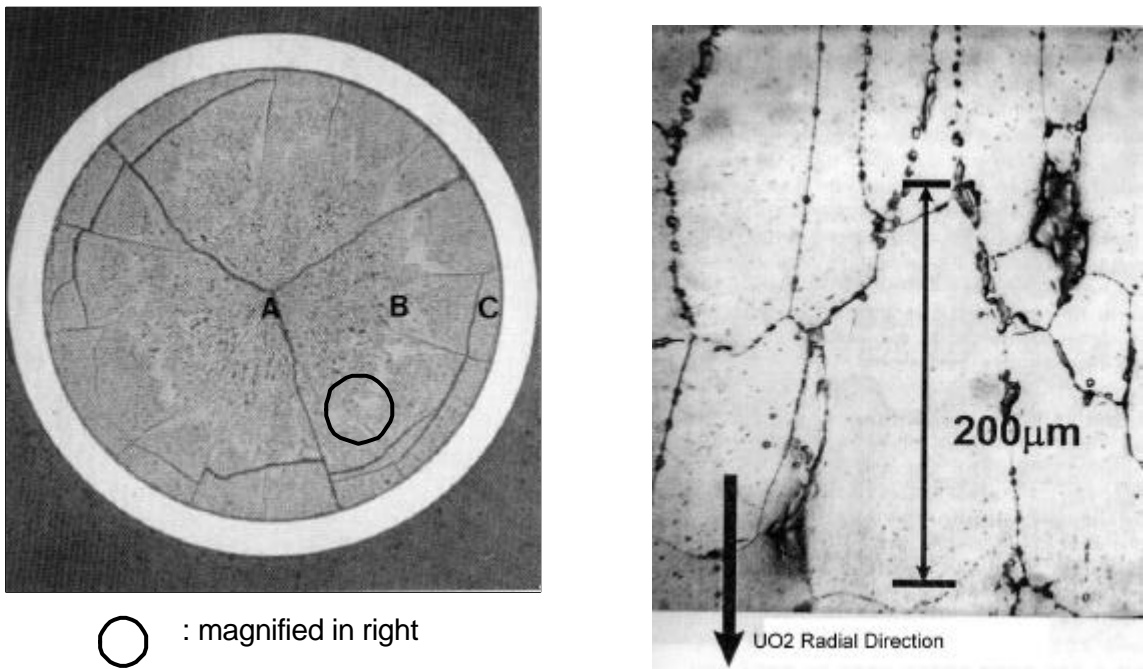


Figure 6. Columnar Grain Growth in Steam Oxidation Environment

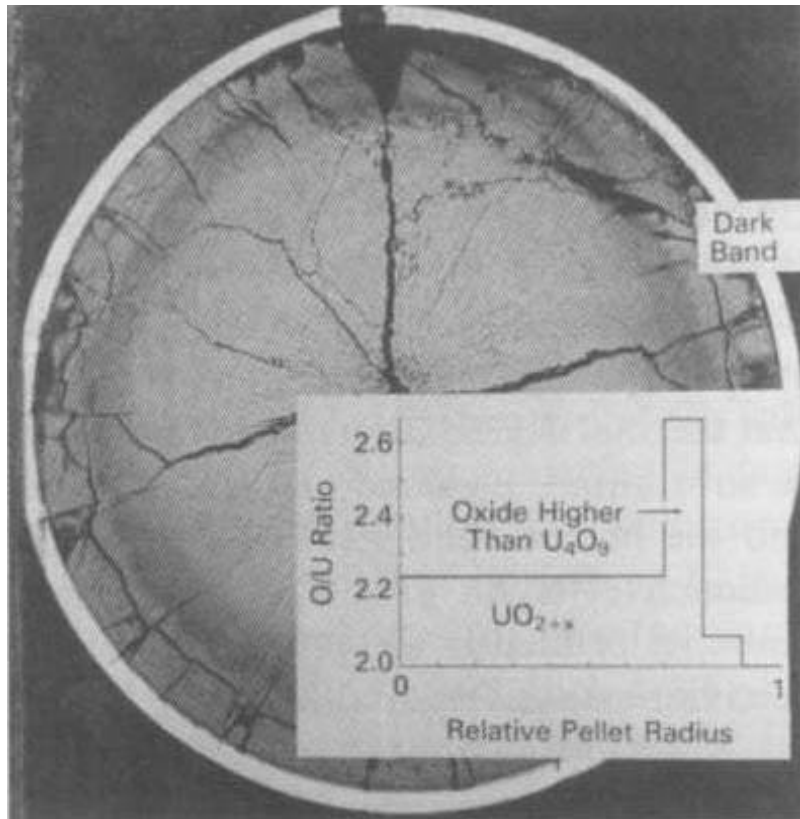


Figure 7. Comparison of Metallographic Sample with Predicted O/M Ratio Distribution in Defect Test