

초음파 공명을 이용한 원전 연료봉의 산화막 두께 측정

주영상, 정용무, 정현규

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150 번지

요 약

핵연료 펠렛이 장입되어 있는 원전연료봉 피복관은 핵분열성 물질의 외부 유출에 대한 일차 방호벽 역할을 하므로 원전의 안전성을 위해서는 피복관의 구조건전성 확보가 매우 중요하다. 고온, 고압의 운전 조건 속에서 연료봉 피복관은 산화막이 생성 성장하여 연료봉을 취성 파괴시킬 가능성이 있으므로 이를 가동중에 비파괴적으로 측정할 수 있는 방법을 개발할 필요가 있다. 산화막이 존재하는 지르칼로이 피복관에 대한 음파의 공명산란을 이론적으로 모델링하고 수치해석을 수행하였다. 산화막이 피복된 원통형 셀의 공명산란에서 공명 원주파의 전파 특성은 산화막의 존재 여부와 그 두께 증가에 따라 크게 변화한다. 수치 해석 결과 제 1차 반대칭 (A_1) 원주파의 특정 부분파의 경우에는 산화막의 존재에도 불구하고 위상속도가 일정한 특이성을 보였다. 이러한 위상속도 특성을 실험을 통하여 확인하였으며 이 현상을 이용하여 산화막의 두께를 측정할 수 있는 새로운 비파괴 평가 방법을 제안하였다.

1. 서 론

원전 연료봉의 피복관으로 사용되는 지르칼로이 피복관(Zr 셀)은 고온 고압에서 운전되는 동안에 물 또는 수증기 분위기에 의한 산화 반응으로 셀 외면에 이산화지르코늄 (ZrO_2) 산화막이 생성되고, 산화막을 통하여 침투하는 산소 이온에 의해 계면 반응이 지속되어 산화층 두께가 계속 성장한다. ZrO_2 산화막은 취성이 매우 커서 산화막 두께가 증가하면 1차 방사능 방호재 역할을 하는 Zr 피복관은 취성 파괴 등의 손상을 받을 가능성이 증가하게 된다. 열효율과 경제성을 높이기 위하여 고 연소도를 갖는 원전 연료봉의 사용이 증대하고 있는 바 이러한 산화막의 두께 측정과 연료봉 파손 여부를 사용중에 탐지할 수 있는 방법이 요구되고 있다. 현재 원전 연료봉 파손 여부는 초음파 검사로 판별하고 있다. 이 방법은 파손 연료봉 속의 물의 존재로 인한 초음파 에너지의 손실 정도를 측정하는 방식인데 그 신뢰도가 그리 높지 않은 것으로 보고되고 있다.[1,2] 산화층 두께 측정에는 대부분 가동후에 원전 연료봉 집합체를 해체한 상태에서 와전류 검사법으로 검사가 수행되고 있으며 최근에는 원전 연료봉 집합체를 해체하지 않고 가동중에 탐지할 수 있는 와전류 검사법이 연구되고 있다.[3] 또한 초음파 공명을 이용하여 파손 연료봉의 탐지 뿐만 아니라 피복관의 결함, 칫수 변형, 물성 변화의 평가와 산화막 두께 측정을 할 수 있는 새로운 비파괴 검사 기술을 국내에서 개발 중에 있다.[4] 본 연구에서는 산화막이 존재하는 원통형 Zr 셀에 대한 초음파 공명을 이론적으로 모델링하여 수치적으로 분석하고 그 결과를 실험적으로 확인하였다. 이를 바탕으로 산화막이 공명 산란에 미치는 영향을 평가하여 산화막 두께 측정 가능성을 제안하고자 한다.

2. 산화막 피복 Zr 셀에 대한 공명 원주파의 전파 특성 해석

물속의 원통형 셀에 대한 초음파 공명 현상은 음파의 공명산란 이론에 기초하여 분석되었

다.[5] Fig. 1 과 같이 물 속에 잠겨져 있고 내부가 진공이며 탄성 층이 피복된 원통형 탄성 셀에 단위 진폭을 가진 평면 음파 $\exp[i(kx - \omega t)]$ 가 수직으로 입사할 때 산란 음압은 레이리 정규 모우드 방법에 의하여 해석된다.[6] 이 산란음압의 진폭은 입사파의 주파수가 증가함에 따라 비교적 부드럽고 규칙적으로 변화하는 배경음압과 불규칙적으로 변하는 공명신호의 합으로 구성되어 있어 산란음압에서 배경음압을 제거하면 공명신호만을 격리할 수 있는데[5] 최근에 배경음압에 대한 새로운 이론이 개발되어 이를 고유 배경음압이라고 명명하였다.[7,8] 이 개념을 적층 셀에도 확장 적용하여 적층 셀에 대한 배경음압 계수가 새롭게 제시되었으며 적층 구조와 배열 순서에 상관없이 적층 셀의 산란음압과 공명신호를 이론적으로 정확히 계산할 수 있게 되었다.[9]

본 논문에서는 산화막을 포함하는 원전 연료 피복관에 대한 산란음압에서 고유 배경음압 계수를 이용하여 원통형 피복 셀에서의 공명 스펙트럼을 구하고 공명 원주파의 전파 특성을 분석하며 피복 산화층이 공명 모우드에 미치는 영향을 해석하고자 한다. Fig. 1 에서 원전 연료 피복관은 탄성 물질로 이루어진 외부 셀(산화막)과 내부 셀(Zr 피복관)이 이상적으로 접합되어 있다고 가정하며 적층 셀의 제일 안쪽 반경을 a_0 , 내부 셀의 바깥쪽 반경을 a_1 , 그리고 외부 셀의 바깥 반경을 a_2 라 둔다. 셀 외부의 유체에서의 입사파에 의한 산란 음압은 다음과 같이 레이리 정규 모우드 시리즈로 표현된다:[5]

$$p_{sc} = e^{-\alpha x} \sum_{n=0}^{\infty} \epsilon_n i^n R_n H_n^{(1)}(kr) \cos(n\theta). \quad (1)$$

이중 적층 셀의 각 층에 대한 변위 포텐셜을 정의하고 이를 경계조건식에 넣어 계산하면 다음과 같이 이 산란 시스템의 산란 행렬식 $D[X] = E_{inc}$ 을 구할 수 있다. 여기서 X 는 미지의 산란계수 R_n 이 포함된 행 벡터이고, E_{inc} 는 외부 입사파를 나타낸다. 그리고 D 는 9×9 산란 매트릭스이고 총 54 개의 요소로 구성된다. 외부 유체에서의 산란 계수 R_n 은 Cramer의 법칙 (즉, $R_n = B_n/D_n$)에 의하여 구할 수 있다. 여기서 D_n 은 D 의 9×9 행렬식이고 B_n 은 D 의 첫번째 열이 E_{inc} 의 요소로 대치된 행렬식이다. 식 (1)에 Hankel 함수의 원거리 근사식을 적용하면 산란음압은 다음과 같다:

$$p_{sc} \cong \sqrt{a_2/2r} e^{i(kr - \omega t)} f(\theta, x), \quad (2)$$

여기서

$$f(\theta, x) = \sum_{n=0}^{\infty} f_n(\theta, x) = \frac{2}{\sqrt{\pi ix}} \sum_{n=0}^{\infty} \epsilon_n R_n \cos(n\theta). \quad (3)$$

함수 $f_n(\theta, x)$ 은 적층 셀에 의한 산란 형태함수로 정의되고 입사 주파수와 산란각에 대한 산란음압의 분포를 나타낸다.

원전 연료봉 피복관은 제작사와 연료 집합체 형태에 따라 다양한 치수로 제조되지만 대부분 피복관의 외반경 대 내반경의 비(a_0/a_1)는 0.865 과 0.89 사이의 값을 가지며 대표적으로 0.88 (상대 두께: $h = 12\%$)의 수치를 갖는다. 지르칼로이의 밀도는 6.55 g/cm^3 이고, 종파와 횡파의 속도는 각각 4600 m/s 와 2360 m/s 이며, ZrO_2 산화막의 밀도는 5.6 g/cm^3 이고, 종파와 횡파의 속도는 각각 7100 m/s 와 3800 m/s 이다. 셀 외면에 피복된 산화막 두께를 $10 \mu\text{m}$, $25 \mu\text{m}$, $50 \mu\text{m}$ 로 선정하여 수치 해석을 수행하였으며 여기서 Zr 셀과 산화막에서의 음파의 감쇠 효과는 고려하지 않았다. 공명신호는 후방 산란 방향에서의 산란형태함수 (f_n)와 이중 적층 셀의 배경음압 ($f_n^{(b)}$)을 계산하고 이를 격리함으로써 얻어지는데, 공명신호의 후방 산란 진폭 ($|f_n - f_n^{(b)}|$)을 정규 모우드(혹은 부분파) $n = 0 \sim 25$, 주파수 $x(\equiv ka_2) = 0 \sim 100$ 범위 내에서 $\Delta x = 0.05$ 간격으로 계산하였다.

$a_0/a_1 = 0.88$ 인 Zr 셀과 $25 \mu\text{m}$ 및 $50 \mu\text{m}$ 두께의 ZrO_2 산화막이 피복된 셀에 대한 공명신호

$(|f_n - f_n^{(b)}|)$ 를 부분파 $n=4, 8, 15, 16, 17, 20$ 에 대한 공명신호 계산 결과를 Fig. 2에 보였다. 부분파에서 공명 모드들은 정규 모드 차수(n)가 증가함에 따라 주파수(ka_2) 축을 따라서 조금씩 오른쪽으로 이동하므로 각 공명 모드를 같은 종류의 원주파로 쉽게 분류할 수 있다. Fig. 2에서는 대칭 모드인 S_0, S_1, S_2 공명 원주파와 스톤리파(Stoneley wave)로 알려진 A 공명 원주파와 반대칭 모드인 A_0 와 A_1 공명 원주파가 함께 나타났다. 이 공명 원주파들은 산화막의 두께 증가에 따라 그 공명의 위치가 저 주파수 방향으로 이동하는 특성을 보이고 있다. 또한 정규 모드(n)가 증가함에 따라 공명 위치의 이동 양상이 변화하는데 n 이 증가하면 산화막 두께 증가에 따른 고차 공명 위치의 이동 폭이 작아짐을 보이고 있다. 특히, A_1 공명은 그 이동 폭이 줄어들면서 $n=15 \sim 16$ 에서 공명 위치가 일정해지는 특이한 결과를 보이고 있는데 이는 A_1 원주파의 위상 속도가 일정함을 의미하며 이 결과를 적용하여 공명 위치를 측정하면 산화막의 두께를 측정할 수 있는 매우 중요한 결과이다.

3. 실험 결과

긴 펄스에 의한 공명 산란 실험을 수행하기 위해 Fig. 3의 도식도와 같이 초음파 스펙트로스코피(spectroscopy) 시스템을 구성하였다. 긴 펄스를 발생시키며 주파수를 연속적으로 증가시키기 위하여 미국 RITEC사의 RAM-10000 모델 Mark IV 장비를 사용하였다. 앞서 구한 수치 해석 결과를 확인 검증하기 위하여 첫번째로 Zr 셸과 ZrO_2 피복 셸에 대하여 A_1 원주파의 공명 위치 일정 특성을 확인하고, 두번째로 ZrO_2 피복 셸의 산화막 두께 측정의 가능성을 확인하는 실험을 수행하였다.

본 실험에서는 KWU 17×17형의 원전 연료 피복관(Zr 셸)을 사용하였다. Zr 셸의 외경은 9.48 mm, 내경은 8.2 mm 이고 두께는 0.64 mm이다. 기준 시편을 고온로에 넣고 650°C에서 12시간, 24시간 그리고 36시간 가열하여 Zr 셸 외면에 각각 10 μm , 20 μm , 30 μm 의 산화막을 형성시켜 ZrO_2 피복 시편을 만들었다. 피복관 내부의 기체가 고온에 의해 팽창하여 피복관 직경이 약간 변화하였기 때문에 피복관 치수 변화에 따른 공명 위치 이동의 영향을 비교 평가하기 위하여 산화막 시편 아래 부분 일부를 무심 연마하여 산화막을 제거하였다. 펄스 폭이 100 μsec 인 사각 음파 펄스를 원통형 셸에 수직으로 입사시킬 경우 입사 주파수가 산란체의 공명 주파수와 일치하게 되면 산란체는 외부 입사파의 에너지를 흡수하고 산란체 자체가 공진한다. 공명 주파수에서 산란 에코가 입사 펄스와 같은 시간 폭을 가진 강제진동 영역과 공명에 의한 재방사로 기인되는 자유진동 영역으로 구분되어 나타나는데 이때 자유진동 영역에 게이트를 걸어 입사 주파수 변화에 따른 자유진동 영역의 진폭 변화를 측정함으로써 후방산란 공명 스펙트럼을 얻을 수 있다.

ZrO_2 피복 셸의 산화막 두께 측정의 가능성을 확인하는 실험을 수행하기 위하여 Panametrics V380 초음파 탐촉자를 사용하여 3 MHz에서부터 3.5 MHz까지 0.25 kHz 간격으로 주파수를 미세 증가시키면서 공명 신호를 수집하였으며 10 μm 의 산화막이 형성된 시편(X-1)과 30 μm 인 시편(X-3)에 대한 실험 결과를 Fig. 4에 보였다. 이 두 시편에 대하여 피복 시편의 산화막이 벗겨진 하단 부위에서 얻어진 공명 스펙트럼과 산화막이 있는 상단 부위에서 얻어진 공명 스펙트럼을 비교해 보면 산화막이 있는 부위의 공명 스펙트럼이 산화막이 없는 부위의 공명 스펙트럼에 비하여 주파수가 낮게 이동해 있음을 알 수 있다. $f=3.23$ MHz 근처에 있는 A_1 공명의 모드 수(n)를 확인하기 위하여 분리 송수신법으로 산란각에 따른 산란 음압 분포를 측정된 결과 산란각 180도에서 총 16개의 꽃잎 개수를 측정할 수 있었고 이 공명은 $n=16$ 임을 확인할 수 있었다.

X-1 시편의 산화막이 있는 부위에서 측정된 $n=16$ 의 A_1 원주파의 공명 주파수(f)는 3.2307 MHz 이었고 산화막이 없는 부위에서 측정된 공명 주파수(f)는 3.2354 MHz 이었다. 그리고 X-3

시편의 산화막이 있는 부위에서 측정된 $n=16$ 의 A_1 원주파의 공명 주파수 (f')는 3.2315 MHz 이었고 산화막이 없는 부위에서 측정된 공명 주파수 (f)는 3.2543 MHz 이었다. A_1 원주파의 위상 속도가 일정하다는 가정 ($C_p \approx C_p'$ 즉, $ka_1 \approx (ka_2)$)하에 산화막의 두께 (t_c)는 다음과 같이 구해진다:

$$t_c = \left(\frac{f}{f'} - 1\right)a_1. \quad (4)$$

위의 식으로부터 계산된 X-1 및 X-3 시편의 산화막 두께 (t_c)는 각각 $7.4 \mu m$, $38 \mu m$ 이다. 이는 실제 산화막 두께를 30% 오차 범위 내에서 실험적으로 예측할 수 있음을 보여 주며 종래의 방법으로 불가능하였던 원전 연료봉의 산화막 두께를 집합체를 해체하지 않고 가동중에 측정할 수 있는 새로운 비파괴 평가 방법의 가능성을 보여 주는 결과이다.

4. 결론

산화막이 피복된 지르칼로이 셸에 의한 공명 산란 현상을 수치적으로 분석하였고 실험적으로 확인하였다. 공명 산란을 수치 해석한 결과, A_1 공명 원주파의 일부 부분과 ($n=15 \sim 16$)에서 산화막 두께 증가에 관계없이 위상 속도가 일정하다는 사실이 밝혀졌으며 이를 공명 산란 실험을 통하여 A_1 공명의 위상 속도 일정 특성을 확인하였다. 이러한 위상 속도 일정의 조건으로부터 산화막이 피복된 탄성 셸에서 산화막 두께를 측정할 수 있는 이론적 근거가 제안되었으며 A_1 공명 원주파를 이용하여 산화막 피복 Zr 셸의 산화막 두께를 측정할 수 있는 새로운 비파괴 평가 방법의 가능성을 보여 주었다.

참고 문헌

- [1] F. D'Annuncci and R. Scharpenberg, "Operational experience of ultrasonic testing on fuel assemblies with FFRDS," Nuclear Europe, Vol. 5, 23-24 (1985).
- [2] Babcock and Wilcox, "Echo sounds out failed fuel," Nucl., Eng. Int., Vol. 31, 45-46.
- [3] C.-Y. Yeh, C.-W. Yang, Y.-F. Lin, and T.-T. Yang, "An advanced technique for fuel rod oxide-layer surveillance," Proc. of the 8th Asia-Pacific Conference on NDT, 779-785, (1995).
- [4] M.-S. Choi, Y.-S. Joo, H.-K. Jung, and Y.-M. Cheong, "Development of nuclear fuel rod testing technique using ultrasonic resonance phenomena," KAERI/RR-1680/96, (1996).
- [5] L. Flax, L.R. Dragonette and H. Überall, "Theory of elastic resonance excitation by sound scattering," J. Acoust. Soc. Am. 63, 723-731(1978).
- [6] Bowman, T. Senior, and P. Uslenghi, *Electromagnetic and Acoustic Scattering by Simple Shapes* (New York; Amsterdam: Wiely Interscience, North-Holland, 1969).
- [7] M.-S. Choi and Y.-S. Joo, "Theory of the background amplitudes in acoustic resonance scattering," J. Acoust. Soc. Am. 101, 2083-2087 (1997).
- [8] M.-S. Choi, Y.-S. Joo, and J.-P. Lee, "Inherent background coefficients for submerged cylindrical shells," J. Acoust. Soc. Am. 101, 1743-1745 (1997).
- [9] Y.-S. Joo, J.-G. Ih, and M.-S. Choi, "Inherent background coefficients for acoustic resonance scattering from submerged, multilayered, cylindrical structures," J. Acoust. Soc. Am. 103, 900-910 (1998).

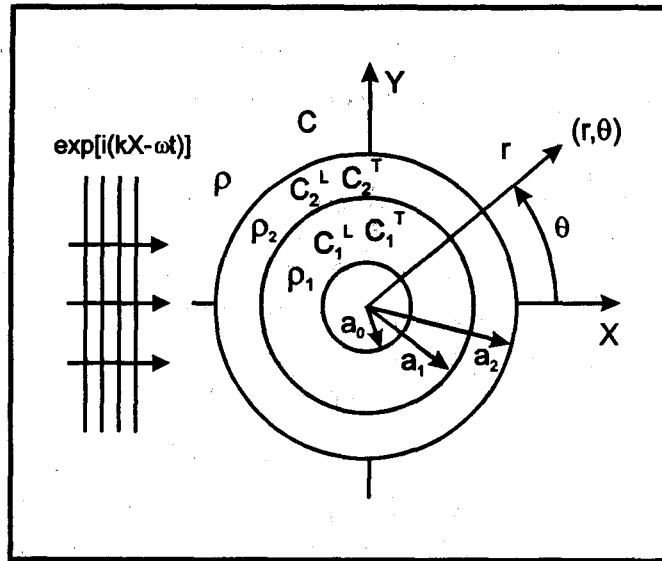


Fig. 1. Notations for the plane wave scattering from an empty, double-layered, elastic, cylindrical shell.

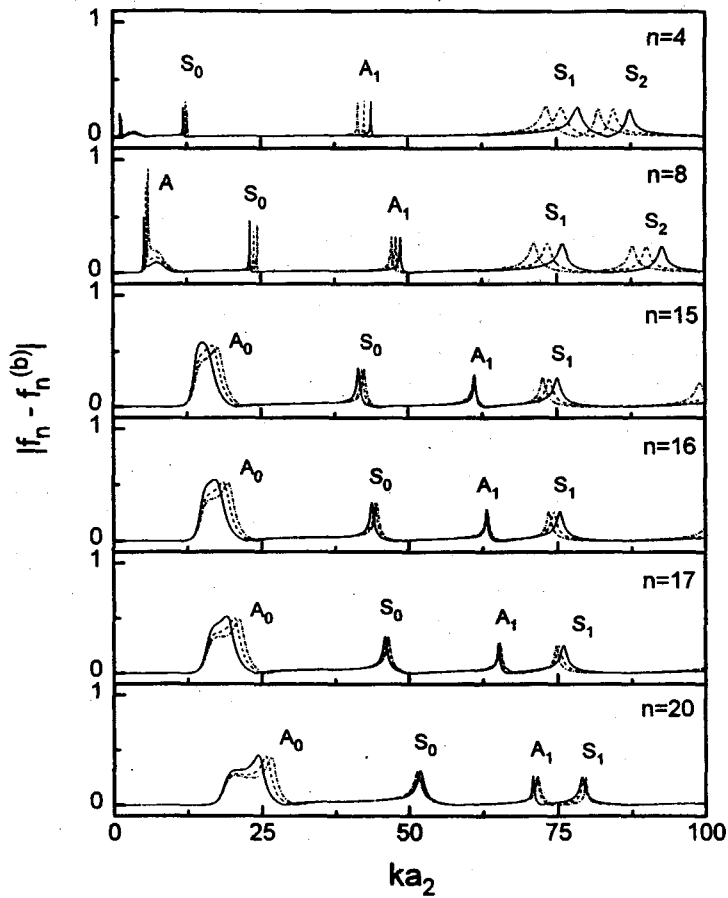


Fig. 2. The isolated resonances of the partial waves for a 12% thick, empty Zr shell (solid line) and Zr shells coated with 25 μm (dashed line) and 50 μm (dash-and-dot line) thick ZrO_2 layer.

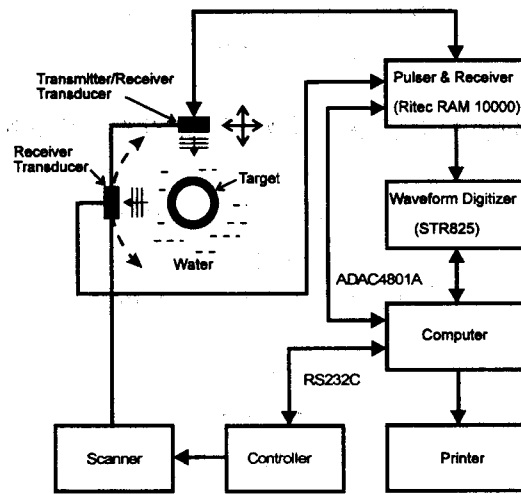


Fig. 3. Experimental setup for measuring the acoustic resonance scattering.

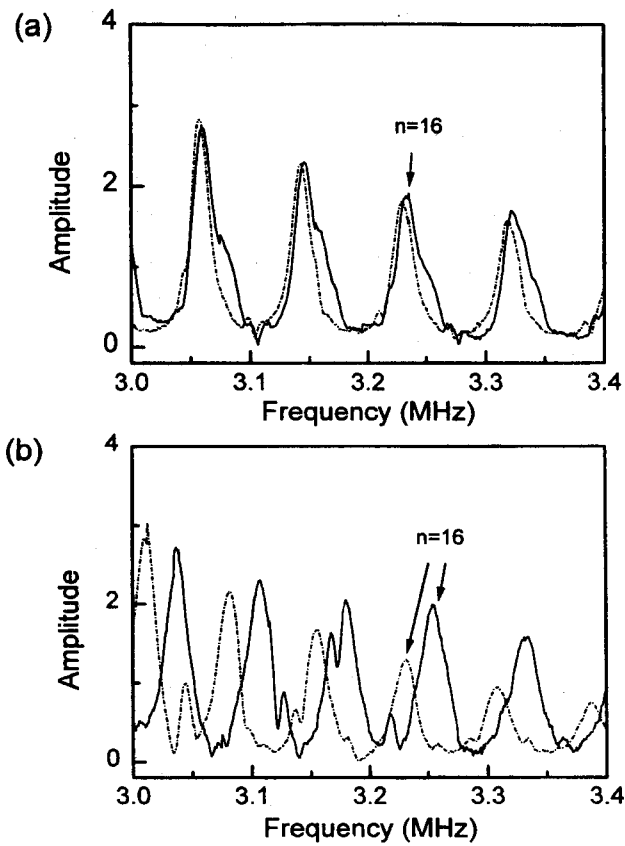


Fig. 4. Resonance spectra of the bare Zr shell (solid line) and the shells coated with ZrO₂ layer (dashed line): (a) X-1 shell and (b) X-3 shell.