

비등이 없는 조건에서의 부식 생성물 부착 Deposition of Corrosion Products under Non-boiling Conditions

정용주, 연제원, 최광순, 이한숙, 김원호
한국원자력연구소, 원자력화학연구부

PWR 운전 프로그램이 장주기, 고효율 방식으로 바뀔에 따라 핵연료 피복재 표면에 발생하는 CRUD의 양이 증가되는 현상이 일부 관찰되고 있다. 이러한 fuel CRUD의 증가는 계통 내 방사선 준위를 상승시키고 방사성 폐기물 발생을 증가시키며 축방향 출력이상(AOA)의 원인이 될 수 있으므로 효율적인 원자로 운영을 위해서는 반드시 해결해야 할 과제 중 하나이다. Fuel CRUD 누적을 완화시키기 위하여 화학 및 체적제어계통(CVCS)의 개선되었고, 연료봉 초음파 세척 시스템이 개발되었다. 특히 EPRI에서 개발된 초음파 세척 시스템의 경우, 현재 상당한 효과를 거두고 있는 것으로 알려지고 있다. 하지만 이러한 방법은 fuel CRUD가 이미 생성된 후에 대처하는 다소 소극적인 접근 방법에 속한다. Fuel CRUD 생성을 근원적으로 저감화시키는 가장 효율적인 방법은 금속이온 및 금속산화물 입자 등으로 알려진 부식 생성물의 핵연료 피복재에 대한 부착을 최소화시킬 수 있는 냉각재 화학조건을 도출하는 것이라는 점에서는 이견의 여지가 없다. 이러한 관점에서 fuel CRUD의 생성기구(mechanism)에 대한 연구가 최근 활발하게 진행되고 있다. 특히 fuel CRUD의 주성분으로 알려지고 있는 nickel ferrite의 생성에 대한 연구는 많은 연구자들의 주목을 받고 있다. 하지만 아직까지 nickel ferrite의 생성기구 규명에는 미진한 측면이 남아 있어 보다 체계적이고 과학적인 접근 방법이 요구되고 있다.

본 연구는 nickel ferrite의 생성과정을 밝히고자 하는 장기적인 목표의 일환으로 nickel ferrite의 모체로 예상되는 철 산화물 부착물의 생성 및 생성과정에 관한 것이다. 냉각재 내의 모사 부식 생성물로는 ferric ion (Fe^{3+}), ferrous ion (Fe^{2+}) 및 hematite ($\alpha-Fe_2O_3$) 입자 등이 선택되었다. 실제 PWR 시스템에서는 fuel CRUD의 생성 속도가 일반적으로 매우 느리기 때문에 연구하는데 있어서 시간적인 문제가 가장 큰 걸림돌로 등장한다. 이를 해결하기 위해 본 연구에서는 가속 부착시험을 고안하였다. PWR의 노심 조건과 비교할 때, 몇 가지 측면에서 가혹한 조건(예를 들면, 십만 배 느린 유속)을 설정하여 가속 부착시험을 수행하였다 (Table 1). Zr heater 표면에 생성된 부착물의 일반적인 형태(색깔, 양, 조성)는 사용된 냉각재 용액에 따라 크게 바뀌었다. 철 아세테이트 용액의 경우, Zr heater의 낮은 온도 영역($140^{\circ}C$)에서는 부착물이 전혀 생성되지 않았고, 높은 온도 영역($180^{\circ}C$)에서는 어두운 회색의 철 산화물(magnetite)이 관찰되었다 (Fig. 1). 한편 철 나이트레이트 용액의 경우, 낮은 온도 영역($140^{\circ}C$)에서는 붉은색 또는 오렌지색 산화물(Fe_2O_3)이 생성되었고, 높은 온도 영역($180^{\circ}C$)에서는 어두운 회색의 철 산화물(magnetite)과 조성이 규명되지 않은 푸른색 철 산화물의 혼합 철 산화물이 관찰되었다 (Fig. 1). 이온종이 전혀 없고 입자만 존재하는 hematite 콜로이드 용액의 경우 부착물이 전혀 생성되지 않았다 (Fig. 2a). 반면에, 철 나이트레이트와 hematite 콜로이드로

구성된 혼합용액에서는 철 이온종으로부터 부착물이 확인되었다 (Fig. 2b).
 생성된 산화물 층 위에 입자성 물질에 기인한

Table 1. Comparison of operating environments between the PWRs and the once-through loop system

Operating Conditions	PWR	Once-Through Loop
Temperature	287 ~ 326°C	140 ~ 200°C
Pressure	10 ~ 16 MPa	2.5 MPa
Heat Flux	~ 60 J/cm ² s	1 ~ 10 J/cm ² s
Concentration of Corrosion Products	10 ~ 100 ppb	10 ~ 100 ppm
Flow Rate	~ 5 m/s	7 × 10 ⁵ m/s

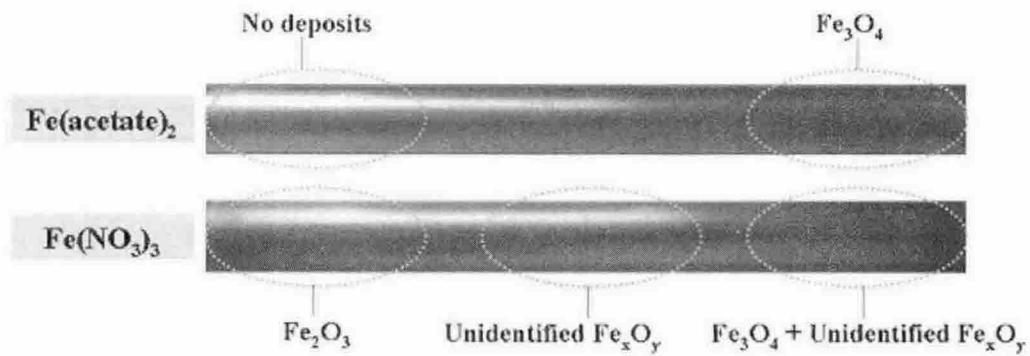


Figure 1. Zr surfaces after the deposition tests in the ferrous acetate solution and the ferric nitrate one at 180C.

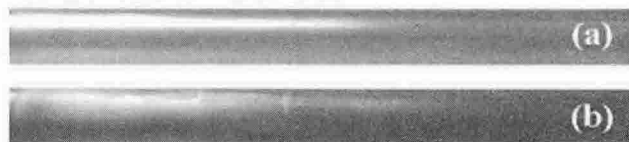


Figure 2. Zr surfaces after the deposition tests at 200C in the suspended hematite solution (a) and the mixed one (b) that consisted of the ferric nitrate and the hematite colloidal particles.