

사용후핵연료 안전성 평가를 위한 수소장입 지르코늄 피복관의 크립거동

정양일, 김현길, 최병권, 박동준, 박상윤, 박정용, 정용환
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 yjiung@kaeri.re.kr

1. 서론

국내 경수로에서 배출되는 사용후핵연료는 전량 원전부지 내의 수조에 임시 보관되고 있으며, 고준위 폐기물처분장의 완공 후에 영구 처분될 것이다. 현재 저장 수조의 용량은 한계에 다다르고 있으며, 빠른 시일 안에 선진국에서와 같이 건식저장에 대한 방안이 마련되어야 한다. 건식저장은 오염원의 배출, 대테러 안전성, 사용후핵연료 관리, 소요부지 측면에서 습식저장에 비하여 장점이 있다. 그러나 사용후핵연료의 건식저장 중에 핵연료 피복관은 핵분열 열에너지와 반응가스에 의한 온도와 압력에 지속적으로 노출된다. 따라서 피복관의 크립파단, 응력부식균열, 수소지연파괴 등과 같은 안전성 저해요소에 대한 연구가 수행되어야 한다.

본 연구에서는 핵연료 피복관의 연소도를 모사할 목적으로 수소를 장입한 Zircaloy-4 피복관을 이용하여 크립시험을 수행하였다. 크립시험은 피복관이 건식저장 환경에서 받는 최대 온도조건인 400°C를 기준으로 하였고, 피복관 내 수소화물은 부식시험을 통하여 산화막 형성의 부산물로서 장입되도록 하였다. 장입된 수소흡수량과 크립거동의 연관성을 확인하고, 크립시험 중 발생하는 수소화물의 재배열에 대해서 분석하였다.

2. 본론

2.1 실험 방법

실험에 사용된 합금은 상용 Zircaloy-4 튜브로 조성은 Zr-1.26Sn-0.23Fe-0.12Cr이었다. 집합도는 Kern 지수로 반경방향으로의 값이 0.6547이었다 [1]. 튜브의 제원은 바깥지름이 9.5 mm이고, 두께가 0.57 mm이었으며, 길이방향으로 5 mm이었다. 또한 크립시편으로의 제작은 정면에서 바라볼 때 도그본(dog-bone) 형태가 되도록 폭 2 mm, 표점거리 2 mm로 와이어 가공하였다. 수소가 장입된 시편은 시편가공 이전에 부식시험을 수행하였다.

부식시험은 400°C 수증기 분위기에서 30일, 60일간 수행하였다. 부식시험 전 피복관의 수소농도는 약 20 ppm이었으며, 부식시험 후에 약 70 ppm 이상으로 증가하였다.

크립시험은 400°C에서 120 MPa의 응력으로 10일간 수행하였으며, 10분 간격으로 크립에 의한 변위를 컴퓨터로 수집하였다. 크립시험된 시편은 최종적으로 단면의 미세구조를 분석하였다.

2.2 크립 변형률

그림 1은 크립시험 전후의 시편 형상을 보여준다. 그림과 같이 시편은 링 형태에서 도그본 형태로 가공하였고, 시험 후에 표점거리 부분이 상하로 연신된 모양을 하였다. 그림 2는 400°C와 120 MPa의 원주방향 응력에서 크립시험된 결과를 보여준다. 10일간의 크립시험에서 시편은 초기 크립(primary creep) 거동을 거쳐 정상상태 크립(steady-state creep)으로 진행하였다. 수소가 장입되지 않은 시편은 크립변형 속도가 가장 빨랐으며, 200시간(12000 min)에서 0.346 mm의 변형이 유발되었다. 반면에 부식시험을 통해 수소가 장입된 시편은 부식시험 일수가 증가함에 따라 크립변형 속도가 더 느려졌다. 수증기 분위기에서 30일 부식시험된 시편은 200시간에서 크립 변형량이 0.268 ~ 0.292 mm이었다. 또한, 수증기 분위기에서 60일 부식시험된 시편은 200시간에서 크립 변형량이 0.212 mm이었다.

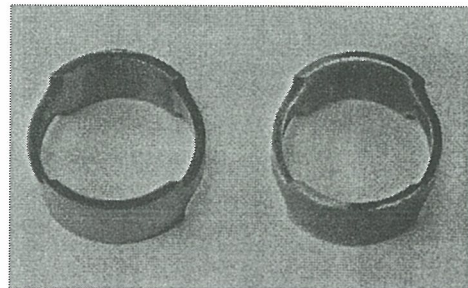


Fig. 1. Appearance of specimens before and after a creep test

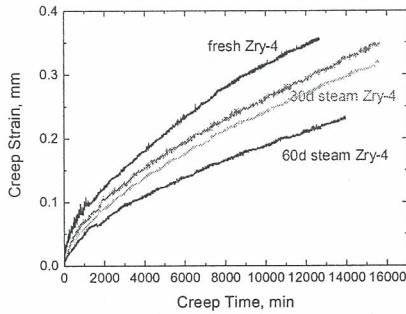


Fig. 2. Variation in creep strains of Zircaloy-4 samples with respect to the oxidation and corresponding hydrogen absorption

2.3 수소화물 재배열

수소화물은 일반적으로 지르코늄 합금의 취화를 유발하는 것으로 알려져 있으며, 특히 수소화물 배열의 방향성은 재료의 기계적 특성에 크게 영향을 미치는 것으로 알려져 있다 [2,3]. 수소화물은 지르코늄의 저면(basal plane)을 따라 석출이 용이하기 때문에, 초기에는 피복관의 원주방향을 따라 형성된다. 그러나 응력조건에 따라 수소화물은 재배열되며, 인장응력에 수직인 방향으로 배열한다.

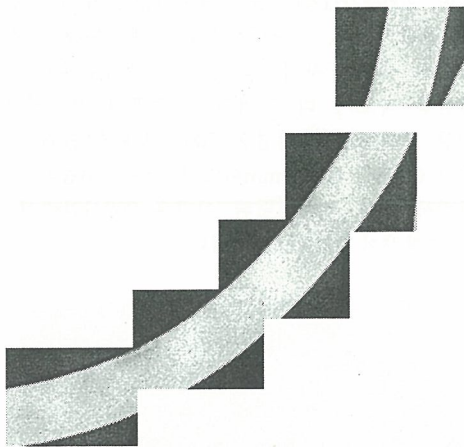


Fig. 3. Morphology of hydrides after a creep in Zircaloy-4 samples which had been steam corroded for 60 days

그림 3은 크립시험 후에 일어난 수소화물의 배열을 보여주는 미세조직 사진이다. 사진의 상하방향으로 크립 인장응력이 가해졌다. 시편의 하단에는 수소화물이 크립시편의 원주방향과 평행하게 형성되어 있는 것을 볼 수 있으나, 시편의 좌상단으로 가면서 수소화물의 배열이 원주방향에서 반경방향으로 변화되는 것을 확인할 수 있다. 이는 크립에 의한 인장응력이 수소화물의 배열을 변화시키는 것으로 해석된다. 크립시편의 표점거리 부분에서는 인장응력이 시편의 원주방향과 동일하게 걸리게 되어, 수소화물은 반경방향으로 재배열하게 된다. 원주방향의 수소화물은 피복관 파손에 큰 영향을 미치지 못하는 것으로 알려져 있으나, 반경방향의 수소화물은 크랙의 선단으로 작용하여 취성파괴를 크게 유발하는 것으로 보고되었다 [3]. 따라서 이러한 수소화물의 재배열은 크립파단이나 인장하중에 의한 피복관 파손에 크게 우려되는 현상이다.

3. 결론

수소가 장입된 Zircaloy-4 지르코늄 피복관으로 건식저장 조건의 실험환경에서 피복관의 크립거동을 관찰하였다. 수소화물이 형성된 피복관은 그렇지 않은 피복관에 비해 크립변형이 적게 나타났다. 반면에 수소화물이 존재하는 경우에는 크립응력에 의해서 원주방향의 수소화물이 반경방향으로 재배열되었으며, 이로 인한 피복관 파손의 가능성이 우려된다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] M.H. Lee, J.H. Kim, S.Y. Park, B.K. Choi, Y.H. Jeong, *Met. Mater. Int.*, Vol. 15, No. 4 (2009), pp. 539~546.
 [2] L.G. Bell, R.G. Duncan, *AECL Report*, 1975, AECL-5110.
 [3] K.W. Lee, S.I. Hong, *J. Alloy. Compd.*, Vol. 346 (2002), pp. 302~307.