

TMI-2 原子爐의 爐心材 핫셀시험결과 검토分析

이 기 순

한국원자력연구소
(1990. 6. 18 접수)

머릿말

TMI-2사고는 원자로 로심이 용융되었을 뿐만 아니라 로심이 붕괴된 [1, 2] 중대사고임에도 불구하고, 발전소 주변의 주민안전에 큰 영향을 주지는 않았다 [3, 4]. 그러나 다량의 핵분열생성물이 연료봉에서 유출되어 냉각재 및 構造材로 갔으며 [5, 6], 극히 일부이기는 하지만 iodine이 생성량의 $\sim 10^6$ 분의 1 그리고 cesium이 생성량의 $\sim 10^{12}$ 분의 1등 핵분열생성물의 일부가 원자로 외부의 주위환경으로 방출되는등 [7], 로심의 손상 및 핵분열생성물의 방출이 중대로심사고시에 일어날 것으로 예상한것 보다 심하게 나타났다. 따라서 이 사고를 계기로 하여 원자로의 안전성에 대한 재평가의 필요성이 크게 대두되어, TMI-2원자로의 사고분석에 관하여 광범위한 연구를 수행하게 되었다 [8].

TMI-2원자로의 사고분석에 필요한 자료는 爐内に 설치되어 있는 계측기, SCDAP코드등으로 추정할수도 있지만, 가장 신빙성 있는 자료는 사고로심에서 채취한 로심재(core material)의 핫셀 시험을 통하여 얻을 수 있다. 이에따라 미국에서는 DOE주관하에 INEL를 중심으로 많은 연구기관에서 [5-15], 그리고 OECD국가에서도 미국으로부터 시료를 제공받아 많은 핫셀시험을 수행하고 있다.

본 해설은 TMI-2원자로의 사고상태에 대한 이해를 돕고자, 저자가 지금까지 수집하여 분석검토한 자료 가운데 사고시의 로심손상에 관해 많은 자료를 제공하고 있는 로심 상부데부리스층(upper debris bed)에서 채취한 로심재의 핫셀시험중에서 특기할만한 결과를 선정하여 개괄적으로 기술하고자 한다.

2. TMI-2 원자로 사고개요

TMI-2사고는 2차냉각계의 이상으로 터빈이 정지되면서 시작되어 로심이 용융되는(melting) 중대로심손상사고로 진행하였다 [1, 16, 17].

즉, 복수기의 이상으로 2차냉각계의 냉각기능이 급격하게 저하되어 1차냉각재의 온도가 상승하게 되었다. 이에따라 로내압격도 허용치 이상으로 증가되어 압력용기안전발브(reactor operating relief valve)가 개방되었는데, 원자로의 긴급정지로 로내압력이 허용치 이하로 감소하였음에도 불구하고 안전발브는 폐쇄되지 않고 그대로 개방상태로 있어 냉각재(coolant)의 유출은 계속되었다(안전발브는 사고후 147분경에 수동으로 폐쇄시켰음) [17]. 그러함에도 불구하고 사고후 100분까지는 loop 펌프가 가동되어 로심이 용융(melting)되거나, 또는 연료의 대량파손을 일으킬 수 있을 정도의 온도 상승은 없었다.

그러나 사고후 100분경 부터는 로내압력의 저하로 냉각재의 비등이 심하여 loop 펌프가 심하게 진동하므로 펌프가동을 중지하였다. 이에따라 로심의 상단부가, 그리고 114-120분경에는 연료체가 냉각재로 부터 노출하기 시작하였다 [18]. 그런데 핵연료가 냉각재로 부터 노출하게 되면 온도가 급속히 상승하게 되므로 [19], 사고후 150분경에는 냉각재에서 노출된 연료봉의 온도가 질르칼로이의 극열산화반응을 일으킬수 있는 1500°C 까지 상승하게 되었다 [20]. 이에따라 냉각재에서 노출된 질르칼로이 피복관에서는 격렬한 산화반응이 일어나게 되어 질르칼로이 피복관이 용융(melting)되고, 이때의 산화열로 인해 연료집합체의 상부노출 및 爐心上部の 연료집합체 상부지

지격자관(core supporting assembly)의 일부도 용융하게 되었다. 그리고 용융된 피복관은 연료봉 내면을 따라 흘러내리면서 핵연료의 외면을 용해(dissolution)시켰다.

사고후 174분경에는 약 19분간 loop 펌프를(실제로 냉각재는 약 19초간 28ton만 爐內에 공급되었음), 그리고 200분경에는 약 17분간 HPI(high pressure injection) 펌프를 가동시켜, 207분경에는 냉각재가 압력용기의 냉각재 출구까지 보충되었다[17]. 그러나 용융로심재(molten core material)가 연료봉 사이에서 응고되어 냉각재의 흐름을 방해했을 뿐만 아니라 붕괴된 로심재인 U-Zr-O 산화물의 낮은 열전도도와 다량의 潛熱로 인하여, 로심의 외부에서만 상당한 냉각이 있었을 뿐 로심내부에서 발생하는 붕괴열의 제열은 충분하지 못하였다. 이에 따라 로심 중앙부는 냉각재속에 잠겨있음에도 불구하고 계속 가열되어 사고후 224분경에는 로심구조재의 약 35%에 해당되는 25ton 가량이 냉각재속에서 용융된 상태에 존재하였다.

이와같이 냉각재속에서 용융된 로심재는 사고후 224-226분 사이에서 용융로심재를 둘러싸고 있던 외피(crust)의 파손으로 약 16ton의 용융로심재가 압력용기 하부(lower plenum)로 떨어지는 로심재의 광범위한 재배치가 일어났다. 이 과정에서 배플(baffle)의 일부가 용융로심재에 의해 용융관통되는 손상을 입었을뿐, 그외에는 거의 손상을 입지 않았고 다만 용융로심재에 접한 압력용기 하부에서 미세한 균열과 SUS계측관의 안내관 2개만이 용융되어 소실된 것이 확인되었다. 그러나 Argonne 연구소에서 압력용기 시편을 검사한 바에 의하면 압력용기의 SUS피복층에서만 균열손상이 있었을뿐 압력용기 기지(base)에서는 균열이 없었다.

그리고 TMI-2원자로에는 사고시 177개의 핵연료집합체가 장전되어 있었는데, 그 가운데 비교적 손상을 적게 받아 연료봉의 切損이 없는 집합체는 로심외측에 위치한 2개뿐이며, 그외의 집합체에서는 연료봉의 절손손상이 일어났는데, 특히 장전된 집합체의 4분의 3에 해당되는 133개 집합체는 모든 연료봉과 안내관(guide tube)이 절손되어 집합체가 두 조각으로 파손되었다[21]. 사고

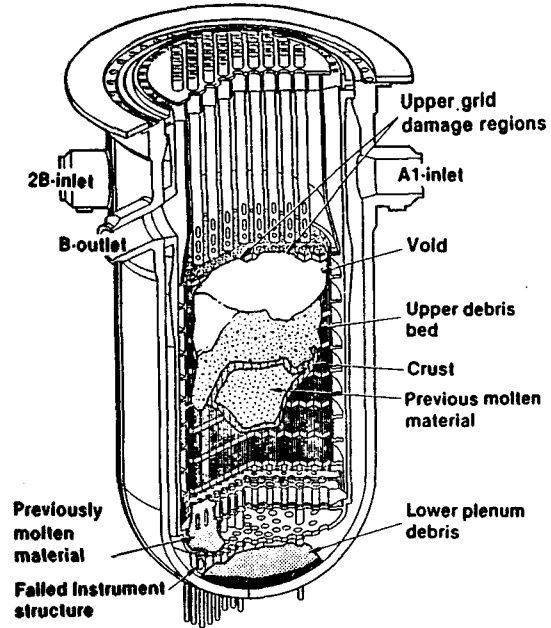


Fig. 1 TMI-2 Core End-State Configuration.

후 TMI-2 원자로의 손상된 로심상태가 그림 1에 있다.

3. 로심재 데브리스의 핫셀시험

로심재는 대부분이 핵연료이므로 (active core material)에서 연료봉이 차지하는 비율은 약 92wt% (임) 원자로의 로심재데브리스(core material debris)도 주로 핵연료봉의 파손, 용융(melting) 및 용해(dissolution)등에 의해 생성되었다.

TMI-2원자로의 로심 상부데브리스층에서 채취한 데브리스는 여러방법으로 분류할 수 있는데, 여기서는 구성성분으로 보아 (1) 연료 데브리스, (2)용융재(melt) 데브리스 (3) 피복관 데브리스, (4) 연료-용융재-피복관 데브리스, (5) 연료-용융재 데브리스, (6) 피복관-용융재 데브리스 및 (7) 용융재-금속 데브리스등으로 분류하여서 INEL 등 여러 연구기관에서 수행한 핫셀시험 [9-14] 가운데, 각 분류별로 특기할만한 시험결과를 분석검토하여 기술하고자 한다.

3.1 연료 데브리스(Fuel Debris)

그림 2는 원자로 로심 H8위치의 데브리스층 표면에서 채취한 연료데브리스의 단면사진이다. 이 데브리스는 연료봉의 파손에 따라 생긴 순수한 연료조각으로 용융되거나 또는 용해되지 않았다.

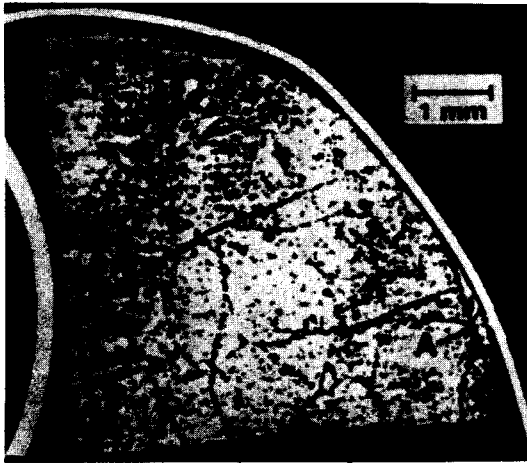


Fig. 2 Fuel Debris Grabbed at H8 Core Position.

이 데브리스의 중심부, 중간부 및 외주부의 조직을 검사한 바에 의하면 [9] 이 연료데브리스는 정상적으로 연소된 사용후핵연료와는 달리 중심부, 중간부 및 외주부에 관계없이 결정립이 동일한 크기로 성장하였는데, 결정립 크기는 $12\mu\text{m}$ 이었다. 이는 제조가공 당시의 핵연료 평균 결정립 크기 $10\mu\text{m}$ 보다 $2\mu\text{m}$ 이 큰 것으로 중심부, 중간부 및 외주부에서의 동일한 결정립성장은 이 연료 데브리스가 원자로내에서 건전하게 연소된 핵연료와는 달리 연료의 전 부분이 거의 동일한 온도 상태에 있었다는 것을 의미한다. 핵연료의 결정립성장은 온도에 따라 성장한계가 있어 핵연료가 로내에서 받은 최고온도를 추정할 수 있는 중요한 자료인데 [22], TMI-2원자로의 경우에는 핵연료가 일시적인 고온상태에 있었으므로 결정립의 성장한계 자료로는 최고온도를 추정할수 없고, 단 시간 가열시의 온도와 결정립성장 관계로부터 추정해야 하는데 이에 의하면 이 데브리스는 사고시 2000K 이상의 온도까지 가열되었다고 보여진다.

이 데브리스는 결정립의 등축성장외에도 그림 3의 주사전자현미경(scanning electron microscope, 이하 SEM으로 기술)의 2次電子像(secondary electron image)에서 보논바와 같이 결정립계에 집적된 기포(bubble)가 서로 연결되어 있었다. 그런데 이러한 기포의 연결현상은 정상적으로 발전로에서 연소된 핵연료의 경우에는 15,000-20,000MWD/T-U 정도의 연소도에서 나타나는 현상이므로, 연소도가 이 보다 상당히 낮은 약 3,000MWD/T-U 정도인 이 연료데브리스에서 나타났다는 사실도 이 데브리스가 사고시 정상적으로 원자로에서 연소된 핵연료에 비하여 상당히 고온상태에 있었다는 것을 의미한다.

그림 4는 그림 2의 A부위, 즉 용융재(melt)가 붙어있는 연료 外周面의 SEM 反射電子像(backscattered electron image, 이하 SEM/BSE像으로 기술)으로 용융재가 연료의 균열에 따라 균열된 상태를 보여주고 있다. 이 용융재를 EDS(energy dispersive X-ray spectroscopy)로 분석한 결과에 의하면 연료와 접한 043부위의 성분은 (U, Zr) O_2 산화물로 되어있는데, 이 데브리스의 최고온도가 UO_2 의 융점 이하인 것을 고려하여 보면 이 (U, Zr) O_2 산화물은 연료가 용융되어 생성된 것이 아니고 피복관이 용융되어 연료와 피복관 사이의 틈으로 흘러내리면서 UO_2 핵연료를



Fig. 3 SEM Secondary Electron Image on Debris of Fig. 2, Showing Interlinked Porosity in Grain Boundary.



Fig. 4 SEM Backscattered Electron Image of Location A on Fig. 2.

용해(dissolution)시켜 생성된 것으로 볼 수 있다. 그리고 이산화물의 외측인 그림 4의 041부위가 ZrO_2 산화층 이고, 내측으로 갈수록(그림 4의 040, 042) Zr의 농도가 적어지면서 U의 농도가 증가하는 현상도 이 산화물이 핵연료의 용융에 의해 생성된 것이 아니고 용융된 피복관이 핵연료를 용해(dissolution)하여 생성된 것을 알려준다.

3.2 용융제 데브리스(Melt Debris)

이 종류에 속하는 데브리스는 로심재가 용융되어 형성된 것으로, 기지(base)는 대부분이 U-Zr-O산화물로 되어 있다. 용융제 데브리스는 일반적으로 기공(void)를 많이 함유하고 있는데, 이러한 기공은 용융재가 응고될때 수축하여 생성된 것으로 기공표면에는 인코넬 그리드(grid) 및 SUS 구조재에서 온 천이금속계통의 합금원소(Ni, Cr, Fe 등)가 개재물(inclusion)로 존재하였다. 그리고 데브리스내에 존재하는 기공의 양은 용융제내 Zr함량이 많을수록 증가하는 경향이 있으며 데브리스에 따라 구형 또는 불규칙한 형태 등 여러모양으로 존재하였다.

그림 5는 로심H8 위치의 데브리스층 표면으로부터 56cm 깊이에서 채취한 용융제 데브리스의 단면사진인데, 길게 늘어난 형태의 기공을 갖는

부위와 크고 둥근 형태의 기공을 갖는 부위, 그리고 작고 둥근 형태의 기공을 갖는 부위등으로 구분할수 있는 것으로 보아 여러개의 용융제 조각이 결합되어 형성된 것으로 보인다. 이데브리스를 SAS(scanning atger spectroscopy)로 분석한 결과에 의하면 기지는 (U, Zr) O_2 산화물로 되어 있었으며, 위치에 따라서 U/Zr비율에 조금씩 차이가 있었다

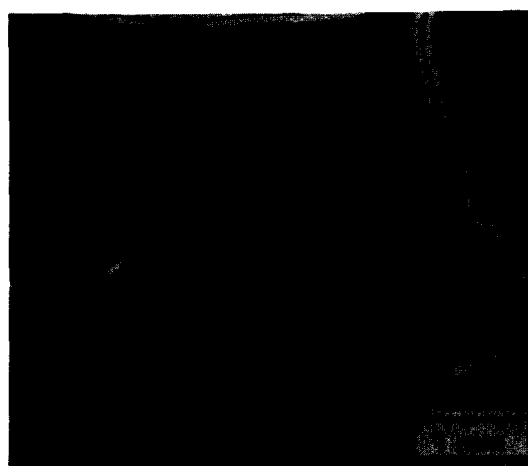


Fig. 5 (U, Zr, O)Melt Debris Grabbed at H8 Core Position.

그림 6은 그림 5의 A부위의 미세조직사진으로 UO_2 핵연료의 애칭용액으로 심하게 애칭하여도 사진에서 보는바와 같이 결정립계가 나타나지 않았다. 이러한 사실로 보아 이 부위의 (U,Zr) O_2 용융제는 용융된 U-Zr합금이 산화되어 생성된 것이 아니고 (U, Zr) O_2 산화물이 직접 용융(melting)되어 생성된 것으로 추정되므로 이부위는 사고시 적어도 2800K 이상의 고온상태에 있었던 것으로 보인다.

그리고 그림 7(a)는 그림 5의 B부위의 SEM/BSE像으로 기공내에 존재하는 介在物을 보여주는데, EDS로 분석하여 본 결과 이 개재물은(그림 7(a)의 697) U, Zr주성분에 Cr 및 Fe가 미량 함유되어 있었다. 그리고 그림 7(b)는 그림 5의 C부위에 존재하는 기공내의 개재물과 결정립계의 析出物을 보여주는데, 기공내 개재물의 조성은 그림 7(a)의 개재물(697부위)과는 다르게

U, Zr가 주성분에 Cr, Fe, Ni이 소량 함유된 부위(그림 7(b)의 714)와 그리고 U, Zr, Cr, Fe, Ni이 주성분인 부위(그림 7(b)의 700)가 있어 인코넬 및 SUS의 합금원소도 주성분으로 존재하였다. 그리고, 결정립계의 석출물(그림 7(b)의 704)에서는 U, Zr, Cr, Fe, Ni외에도 제어봉(control rod)의 주성분인 Al도 존재하였다.

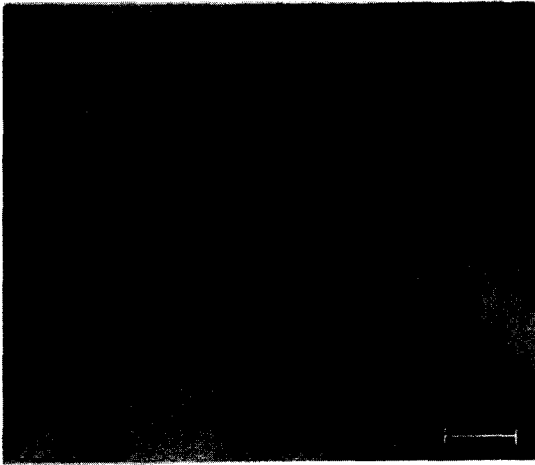


Fig. 6 SEM Backscattered Electron Image of Location A on Fig. 5.

그림 8은 로심E9 위치의 데브리스층 표면으로부터 74cm 깊이에서 채취한 용융재 데브리스의 단면을 연료애칭(fuel etching)한 사진으로, 기지는 (U, Zr)O₂산화물로 되어 있으며, 중심의 일부만이 거의 순수한 UO₂연료 상태로 존재하였다(중심부에 심하게 애칭된 부위가 UO₂연료부위). 이 데브리스는 위치에 따라 Zr함유량에 크게 차이가 나는데, 대부분의 (U, Zr)O₂基地에서의 Zr함유량은 0.5-1a/o이었다. 그러나 그림 8의 A부위와 같이 균열부위 근처나 또는 기공 및 외면주위에서의 Zr함유량은 ~7a/o, 그리고 연료부위(그림 8의 B부위)에서의 Zr함유량은 0-0.5a/o로 Zr을 거의 함유하지 않았다.

이 데브리스는 용융된 (U, Zr)O₂산화물이 연료 조각과 결합하여 생성된 것으로 Zr을 미량 함유한 중심부의 일부를 제외하고는 그림 9(a)에서 보는 바와 같이 심하게 애칭을 하여도 결정립계가 나타나지 않았다. 이것으로 보아 이 데브리스는 (U,

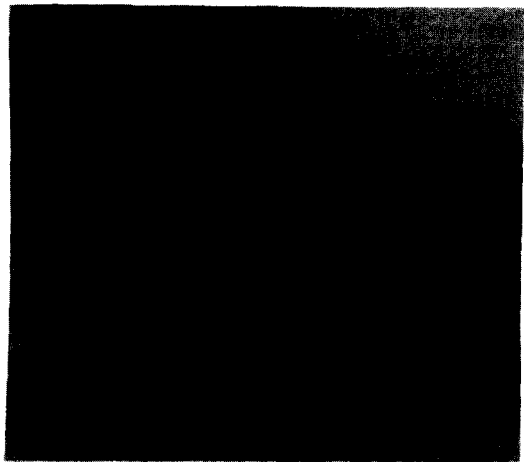
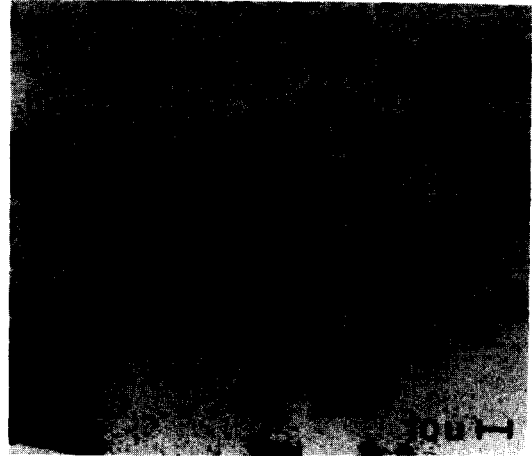


Fig. 7 SEM Backscattered Electron Images of Precipitates in Void of Location B (Upper) and Location C (Lower) on Fig. 5.

Zr)O₂산화물이 용융된 상태에서 급냉된 것으로 보인다. 그러나 Zr을 미량 함유한 중심부(그림 8의 B부위)에서는 그림 9(b)에서 보는바와 같이 결정립계가 나타났는데, 결정립의 날카로운 모서리가 많이 소실되었을 뿐만아니라 결정립의 분리현상이 나타났으며 결정립제도 기공이 없는 무기공(pore free)상태 이었다. 그런데 UO₂ 핵연료의 이러한 현상은 용접부근의 온도에서나 나타날수 있는 현상임을[23] 고려하여 본다면 이 부위는 3000-3100K 범위의 온도상태에 있던 용융된 (U, Zr)O₂산화물이 핵연료에 접촉하면서 핵연료의 온도

를 상승시켜 일어난 현상으로 보인다. 따라서 이 시험결과로 보면 TMI-2사고시 로심의 최고온도는 부분적으로 3000K를 초과한 것으로 볼수있다.

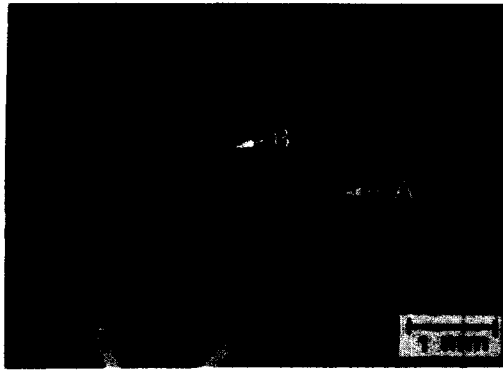


Fig. 8 (U,Zr,O)Melt Debris Grabbed at H8 Core Position.

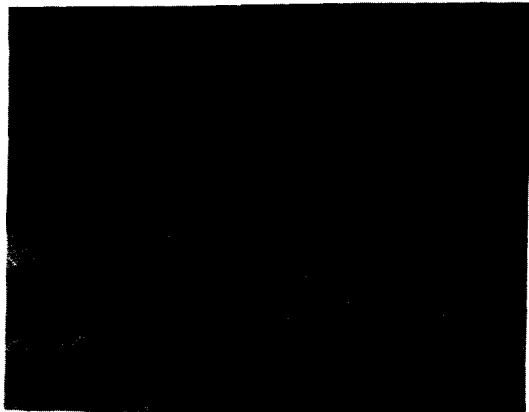


Fig. 9 SEM Backscattered Electron Images of Medium Zr Content Region (Upper) and Low Zr Content Region (Lower) on Fig. 8.

3.3 피복관 데브리스(Clad Debris)

그림 10은 로심H8 위치의 데브리스층 표면에서 채취한 피복관 데브리스의 단면사진으로, 외면은 ZrO_2 산화층으로, 그리고 이 산화층위에는 소량이지만 일시 용융되었던 (U, Zr) O_2 산화물이 붙어있었다. 한편 피복관 내부는 산소를 다량 고용한 α -Zr(0)으로 되어있었으며 내측면에는 핵연료가 부착되어 있었는데, 핵연료와 피복관의 고온반응에 의해서만 생성될 수 있는 (U, Zr) O_2 산화층이 핵연료와 피복관의 계면 및 피복관 내부의 Zr(0)영역에서 생성되었다.

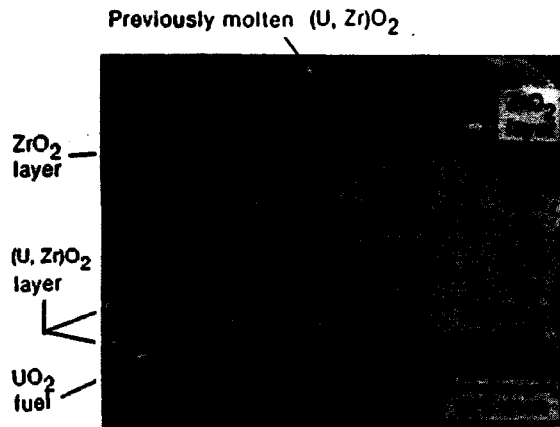


Fig. 10 Clad Debris Grabbed at H8 Core Position.

그림 11은 피복관과 그 외면에 붙어있는 ZrO_2 산화층과의 界面인 그림 10의 A부위의 SEM/BSE像으로 그림에서 보는바와 같이 ZrO_2 산화층에서는 Zr금속이 줄(stringer)상으로, 그리고 피복관의 Zr(0)기지에서는 ZrO_2 가 반점으로 존재하였다. 이러한 현상은 산화된 피복관 데브리스가 용융상태에서 냉각될때 ZrO_2 산화층에서는 Zr이, 그리고 피복관의 내부 Zr(0)기지에서는 ZrO_2 가 석출되어 일어나는 현상으로 이 데브리스가 용융상태에 있었다는 것을 의미하는데 [24], ZrO_2 산화층에서 생성된 Zr 금속석출물 사이의 간격이 넓은 것으로 보아 이 데브리스는 급냉보다는 서서히 냉각되었다는 것을 알 수 있다. 또한 계면

부위의 EDS분석 및 X-線像 분석결과에 의하면 Al을 주성분으로 한 철이금속의 석출물이(그림 11의 1부위로 조성은 wt%로 67Al-27.2Zr-3Fe-2.8Cr) 層으로 존재하였는데, 이 석출물의 Al은 Al_2O_3 - B_4C 비가연성 독성물질제어봉에서 온 것으로 보여진다(그림 11의 2부위는 Zr금속 석출물).

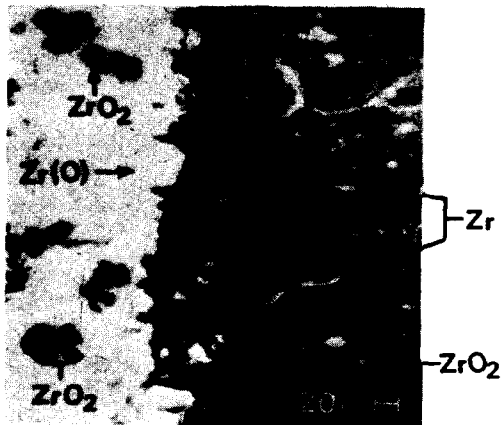


Fig. 11 SEM Back Scattered Electron Image of Clad-ZrO₂ Layer Interface of Location A on Fig. 10.

그림 12는 그림 10의 B부위인 연료와 피복관 界面의 SEM/BSE像인데, 이 계면의 조성을 SEM/BSE像의 명암도와 EDS분석 결과등으로 종합하여 판단해 보면 피복관의 Zr(O)기지에서 U-Zr합금(그림 12의 9, 11부위)과 ZrO₂(그림 12의 10부위)가 2次相 및 析出相으로 존재하였다. 그리고 연료와 피복관 사이의 용융재는 (U, Zr) O₂산화물이었는데 U-Zr합금(그림 12의 2, 4, 5, 6, 8부위)과 Zr금속(그림 12의 3부위)이 2次相으로, 그리고 인코넬과 SUS성분인 Fe, Cr을 함유한 Zr-Fe-Cr-U 합금이 석출상으로 존재하였다.

한편 피복관에 부착되어 있는 연료부위(그림 12의 1부위)의 결정립 크기를 측정하여 본 결과 결정립은 약 30 μm크기로 성장하였는데, 이러한 결정립의 성장자료는 역시 이 피복관 데브리스가 원자로 사고시 피복관의 응점을 훨씬 초과했다는 사실을 뒷받침하여 준다.



Fig. 12 SEM Back Scattered Electron Image of Clad-Fuel interface in Location B on Fig. 10.

3.4 연료-용융재-피복관 데브리스 (Fuel-Melt-Clad Debris)

그림 13은 로심 H8위치의 데브리스층 표면에서 채취한 연료-용융재-피복관 데브리스의 단면사진이다. 이 데브리스는 냉각재상실에 따라 일어난 로심온도의 상승에 의해 피복관 내부가 용융(melting)되어 흘러내리면서 연료를 용해(dissolution)시켜 형성된 데브리스로, 피복관 외면은 ZrO₂산화층으로, 그리고 연료와 피복관 사이에는 U-Zr-O산화물 용융재가 고화되어 있었다. 그런데 연료와 피복관의 틈에서 고화된 용융재의 두께가 일정하지 않은 것으로 보아 이 데브리스가 생성된 연료봉은 파손되기 전에 상당한 비대칭적인 팽윤(swelling)이 일어났던 것으로 보인다. 또한 연료와 피복관의 상실이 거의 없는 상태로 보아 연료와 피복관사이의 U-Zr-O용융재는 이 부위에서 생성된 것이 아니고 연료봉 상부에서 피복관이 용융되어 흘러내리면서 핵연료를 용해시켜 생성된 것을 알수있다. 한편 연료와 피복관 사이에서 고화된 용융재에는 그림 13에서 보는바와 같이 커다란 구멍이 형성되었는데, 이 구멍은 이 부위의 용융재가 밑으로 떨어지면서 그 부위가 연료봉 내 수증기의 상승통로가 되어 형성된 것으로 보인다. 그 이유는 그림 14의 SEM/BSE像에서 보는

바와 같이 구멍의 내표면이 용융재의 내부에 비하여 심하게 산화되었는데, 이러한 산화층은 수증기와 접촉이 많았다는 사실로 입증될 수 있기 때문이다.

Steam-oxidized voids

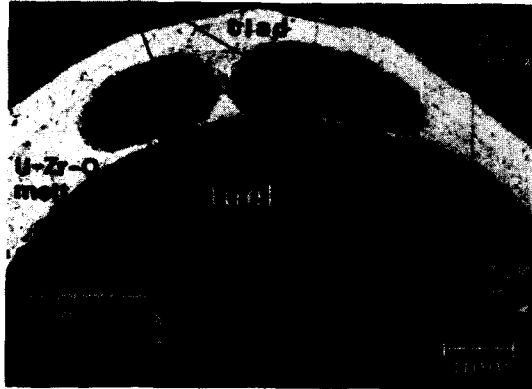


Fig. 13 Fuel-(U,Zr,O)Melt-Clad Agglomerate Debris Grabbed at H8 Core Position.

이 데브리스의 연료와 피복관 사이에 있는 U-Zr-O 용융재는 그림 14에서 보는바와 같이 α -Zr(O) 및 U-Zr합금상과, 그리고 두상 사이에는 압착된 형태의 高Zr遷移金屬 합금상이 존재하는데, 이 부위를 EDS로 분석한 결과에 의하면 Zr-천이금속 합금상은 Zr 주성분에 U, Ni가 소량 그리고 Cr, Fe가 미량 함유된 것으로 밝혀졌다. 여기서 Fe와 Cr은 피복관의 합금원소인데 반하여 Ni은 질르칼로이-4 피복관에는 함유되어 있지 않고 연료집합체의 그리드(grid)모재인 인코넬에 함유되어 있는 성분임을 고려하여 보면 Ni성분은 그리드에서 온 것으로 보인다.

또 이 부위의 조성을 Zr, Fe, U 및 U-Sn의 SEM X-선像(X-ray image)으로 관찰한 바에 의하면 특기할 것은 질르칼로이 피복관의 합금원소인 Sn(질르칼로이 피복관에 ~1.2 w/o 함유)이 α -Zr(O) 결정내에서는 검출되지 않았고 U-Zr 합금 및 U-Zr천이금속의 합금상에서만 검출되었다 [13]. 한편 용융재에 인접한 연료부위(그림 13의 B부위)의 조직과 성분을 조사한 결과에 의하면 [9], 핵연료가 용해된 흔적은 없었으며 결정립도 $10\mu\text{m}$ 정도로 제조시의 결정립 크기와 비슷하였

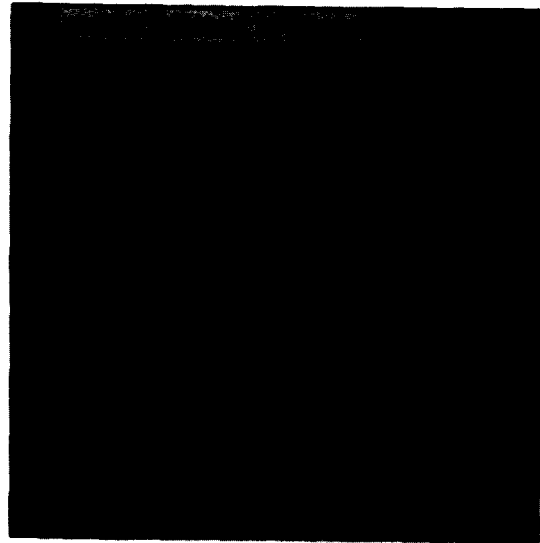


Fig. 14 SEM Backscattered Electron Image in Location A on Fig. 13.

으나 피복관에 접한 부위에서는 Zr 및 Fe가 검출되었다. 이러한 사실을 보면 U-Zr-O용융재는 연료에 접촉하자마자 응고된 것으로 보이며, 연료 내의 Zr 및 Fe는 용융재로부터 확산하여 침투한 것으로 추정된다. 이러한 사실과 결부하여 그림 13에서 보는바와 같이 피복관 외부의 ZrO_2 산화층이 그리 두껍지 않은 사실 및 피복관 내부의 α -Zr(O)의 결정립성장이 크지 않은 사실등을 종합하여 검토해 보면 이 데브리스는 사고당시 높은 온도 상태에 있지는 않은것 같다.

3.5 연료-용융재 데브리스(Fuel-Melt Debris)

그림 15는 로심E9 위치의 데브리스층 표면으로부터 56cm의 깊이에서 채취한 연료-용융재 데브리스의 단면사진으로, 불규칙한 형태를 갖는 커다란 연료조각에 (U, Zr) O_2 산화물 용융재가 부착되어 있었다.

이 데브리스의 연료부위를 조직점사한 결과에 의하면 그림 16에서 보는바와 같이 기포(bubble)가 결정립계에 모여 서로 연결되어 있는데, 이와 같은 기포연결 상태는 정상적으로 연소된 핵연료의 경우에는 전술한 바와같이 15,000-20,000

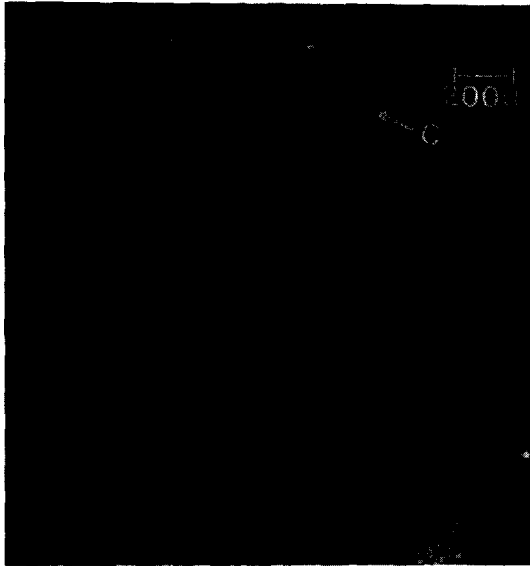


Fig. 15 Fuel-(U,Zr,O)Melt Agglomerate Debris Grabbed at H8 Core Position.

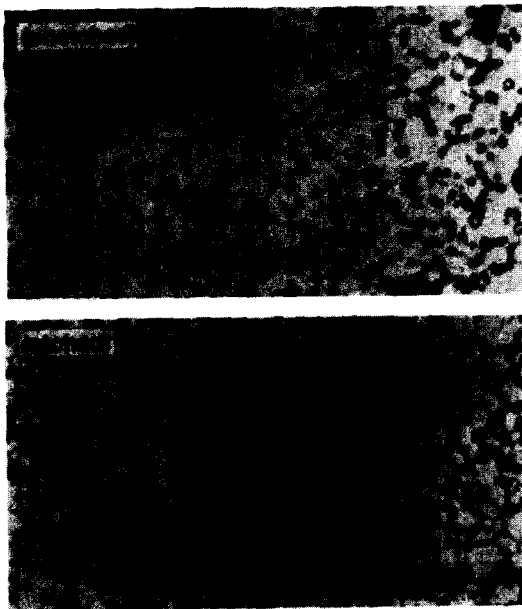


Fig. 16 Fuel Structure of Location B on Fig. 15; Showing Interlinked Porosity in Grain Boundary.

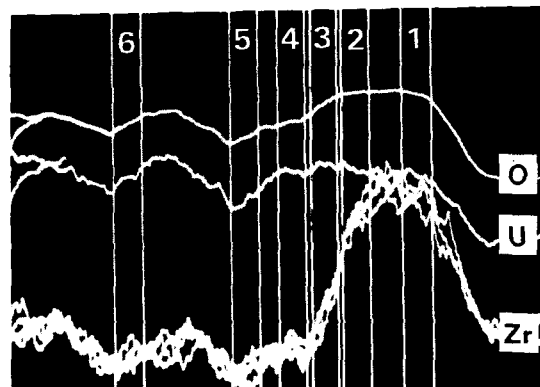
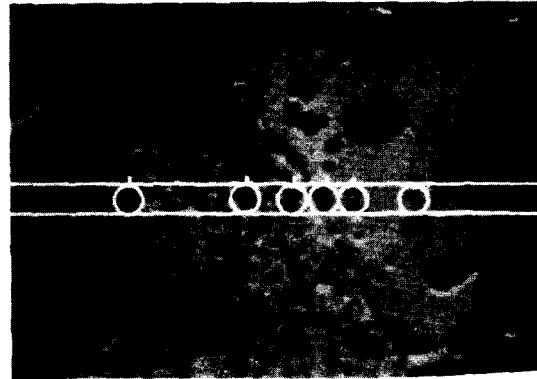


Fig. 17 Scanning Auger Microprobe Analysis of Diffusion Bonding Across the Fuel-(U,Zr, O)Melt Interface of Location C on Fig.15

MWD/T-U 정도의 연소도에서나 나타나는 현상으로 TMI-2 원자로에서와 같이 저연소된 핵연료에서 나타났다는 사실은 이 데브리스가 사고당시 높은 온도상태에 있었다는 것을 의미한다. 그러나 결정립의 성장이 작은 것으로 보아 연료부위의 최고온도는 사고당시 일정시간 동안 1900K 이상을 초과하지는 않은것 같다.

한편 연료기지내의 A 및 B부위의 조성을 SAS로 분석한 결과에 의하면[9], O가 71.3a/o U가 28.7a/o로 O/U비율은 약 2.5로 연료부위가 크게 산화되었다. 이를 U-O상변태도[25]로 분석하여 보면 연료기지 (base)가 UO_2 결정구조에서 U_4O_9 과 $UO_{2.6}$ (U_5O_{13} 또는 U_8O_{21} 의 결정구조)의 2相結晶構造로 변화한 것을 의미하는데 [23], UO_2 연료의 산화기구에 관해서는 산소의 연료내 확산이 가장 유력하게 제시되고 있다[24]. 그리

고 연료와 접한 용융재부위의 U와 Zr의 분포를 EDS로 분석한 결과에 의하면 용융재의 평균조성은(산소를 제외한 조성)U 및 Zr이 각각 66w/o 및 34w/o로, 연료에 근접한 부위일수록 U/Zr 비율이 증가하였다.

그림 17은 그림 15의 B부위, 즉 연료-용융재 계면을 SAS로 분석한 결과로 계면에서의 U, Zr 및 O의 분포를 보여주는데, 특기할 것은 계면에서의 Zr농도구배이다. 이 분석결과로부터 용융재는 (U, Zr)O₂ 산화물로 구성되었음을 알수있으며, 연료-용융재 계면에서의 Zr 농도구배는 U-Zr-O산화물이 연료에 부착되면서 일어난 Zr의 연료내 확산을 의미하므로 사고당시 이 데브리스의 온도 및 온도보지시간을 추정하는데 사용할수 있다.

3.6 피복관-용융재 데브리스(Clad-Melt Debris)

그림 18은 로심E9 위치의 데브리스층 표면으로부터 56cm 깊이에서 채취한 피복관-용융재 데브리스의 단면사진으로 2개의 피복관사이에서 U-Zr-O 산화물이 고화되어 생성된 것으로 보인다. 이 데브리스의 피복관-용융재 界面 부위를 미세조직사

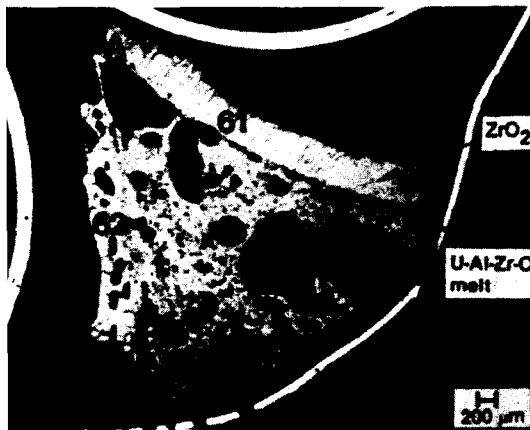
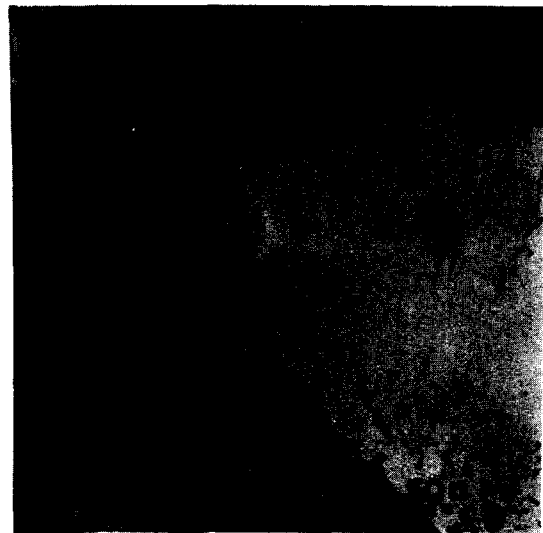


Fig. 18 Clad-(U,Zr,O)Melt Agglomerate Debris Grabbed at H8 Core Position.

과 SEM/BSE像으로 조사한 결과에 의하면 피복관의 외부는 Zr₂O₃ 산화층으로, 그리고 내부는 ZrO₂로 되어있는데 특기할 것은 피복관 내부에

약 5a/o의 탄소가 함유되어 있었다 (그림 18의 61, 62부위).

그림 19(a)는 그림 18의 A부위의 미세조직사진으로 기공(void)내에 존재하는 개재물(inclusion)을 보여주는데(그림 19(a)의 654), EDS로 조사하여 본 결과 성분은 at%로 4.4 Zr-21.6O-16Ni-18.9Sn-38.5C로 C가 다량 함유되어 있었으며, 介在物內에서는 주성분이 Sn-Ni



19 Photograph(Upper, Location A of Fig. 18) and SEM Backscattered Electron Image(Lower, Location B of Fig. 18).

과 Sn-Ni-Ru인析出物, 그리고 주성분이 Sn인 석출물이 확인되었다. 한편 그림 18의 B부위에는 주성분이 Al인 조직(그림 19(b)의 646)과 주성분이 Al-Zr인 조직(그림 19(b)의 647, 648)이 공존하는 복합조직으로 구성되어 있었는데, 이 부위의 SEM/BSE像이 그림 19(b)에 있다.

이 데브리스의 특징은 다른 데브리스에 비하여 C와 Al을 다량 함유하고 있는 것인데, 원자로에서 Al, C성분을 다량 함유하고 있는 부품은 Al_2O_3 - B_4C 비가연성특성물질 제어봉이므로, 이 데브리스는 사고시에 Al_2O_3 - B_4C 제어봉과 상당한 반응이 있었던 것으로 보인다.

3.7 용융재-금속 데브리스(Melt-Metal Debris)

그림 20은 로심E9 위치의 데브리스층 표면으로부터 56cm 깊이에서 채취한 용융재-금속 데브리스의 단면사진으로, U-Zr-O산화물 용융재에 금속체가 부착되어 있었다. 이 데브리스의 특징은 자성을 갖는 것으로, 시험결과에 의하면 용융재에 붙어있는 금속이 常磁性을 나타냈는데, EDS분석결과 이 금속체의 성분은 Ni이 96w/o 그리고 Fe가 4w/o에 Sn이 미량 함유되어 있었다.

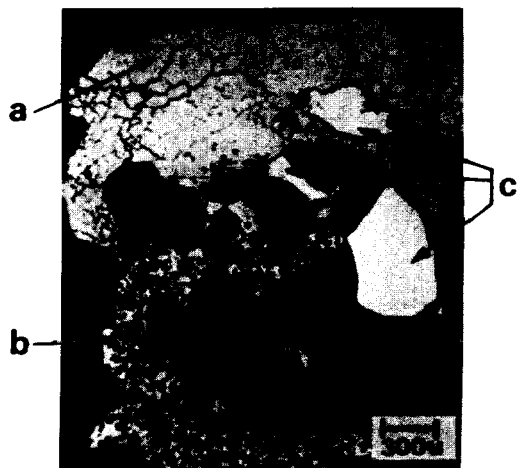


Fig. 20 (U,Zr,O)Melt-Metal Agglomerate Debris Grabbed at H8 Core Position; (a) Solid Mixed Oxide Grains, (b) Porous (U,Zr,O) Melt and (c) Ni Metallic Ingots.

이 데브리스에서 특별히 관심을 끄는 것은 Ni 함량이 96w/o인 고농도 Ni금속체의 생성인데, 이 금속체의 生成源으로 생각되는 Inconel 718(Ni 함량은 약 52w/o)에서 어떻게 96w/o 정도의 고농도 Ni금속체가 생성되었는지에 관해서는 아직까지도 정확한 해석은 못하고 있다[24]. 그러나 1000-2000K 범위내에서 Inconel의 주요 합금원소인 Ni, Cr, Fe, Nb, Ta 및 Mo 가운데 Ni의 산화물생성자유에너지(oxide formation free energy)가 가장 낮은 것으로 보아, 산화물생성자유에너지와 깊은 관계가 있을 것으로 추측된다.

한편 용융재와 금속체의 결합계면에는 그림 21에서 보는바와 같이 확산층이 존재하는데, 이러한 사실로부터 추측하여 볼때 용융재내 Ni금속체(그림 21의 2, 3)는, 높은 온도상태에 있던 용융된 Ni이 이보다 낮은 온도상태에 있던 응고된 용융재내의 커다란 기공(void)에 스며들어가 생성된 것으로 보인다. 그리고 연료와 Ni금속체 사이의 확산층 성분은 산소를 제외하면 U, Zr 주성분에 Fe 및 Ni이 소량 존재하였다(그림 21의 1, 3, 4, 5부위).

이 데브리스의 조직을 보면 그림 20에서 보는바와 같이 결정립이 보이는 상부와 기공(void)을 많이 함유하고 있는 하부로 구분되는데, EDS로 분석하여 본 결과 결정립이 있는 상부의 조성은 산소를 제외하고 U가 32w/o, Zr이 68w/o인데 반하여, 기공이 많은 하부는 U가 50~60w/o 그리고

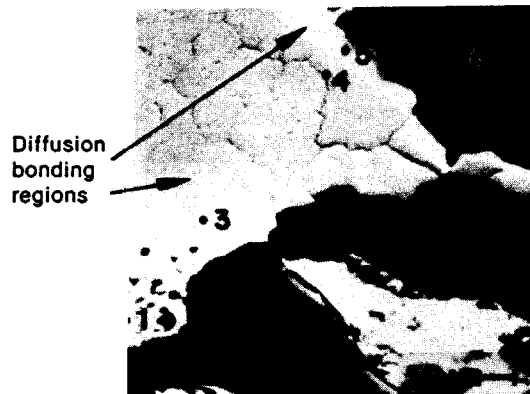


Fig. 21 SEM Backscattered Electron Image of Location A on Fig. 20.

Zr이 35~45w/o에 천이원소가 약 5w/o 함유되어 있었다.

맺음말

지금까지 TMI-2원자로 사고로심의 상부데브리드층에서 채취한 데브리드(debris)의 핫셀시험결과 가운데, 대표적인 결과를 선정하여 분석검토하였는데, 그 내용을 종합하여 보면 다음과 같다.

1) 대부분의 데브리드가 용융된 U-Zr-O산화물인 것으로 보아 사고시 로심재의 대부분은 2200K 이상의 온도상태에 있었다. 그러나 일부의 데브리드는 (U, Zr)O₂ 산화물이 용융된 것으로 보아 2800K 이상의 고온상태에 있었다.

2) 용융재(melt) 데브리드내에서 미량(0.5 a/o 이하)의 Zr을 함유한 연료부위의 결정립이 무기공(pore free)상태에 있었고, 결정립 모서리도 소멸되어 결정립의 분리화 현상이 일어난 것으로 보아 로심의 일부는 사고당시 ~3000 K 이상의 고온상태에서 있었던 것으로 보인다.

3) 연료데브리드의 기지(base)일부가 70a/o 이상의 산소를 함유하고 있는 것으로 보아 사고시 원자로내에는 산화성의 고온고압 수증기분위기가 있었던 것으로 보인다.

4) 용융재 데브리드의 결정립계 또는 기공(void)내에 제어봉과 Inconel 및 SUS 성분인 Al, Fe, Cr, Ni등이析出物 또는 介在物로 존재하였다. 그리고 데브리드내 Zr농도가 대부분 50w/o 이하인 것으로 보아 사고시 로심재가 광범위하게 재분포 한것을 알수있다.

참고 문헌

1. E.L. Tolman, J.P. Adams, J.L. Anderson, P. Kuan, P.K. McCardell and J.M. Broughton, "TMI-2 Accident Scenario Update", EGG-TMI-7489(1986)
2. J. Adams and R. Smith, "Lower Plenum Video Data Summary", EGG-TMI-7429 (1987)
3. U.S.N.R.C., Final Programmatic Environmental Impact Statement Related to Decontamination and Disposal of Radioactive Waste, Resulting from Mar. 28, 1979, Accident Three Mile Island Nuclear Station Unit 2", NUREG-0683
4. M. Rogovin and G.T. Frampton, Jr., "Three Mile Island-A Report to the Commissioners and to the Public", USNRC Report, NUREG/CR 1250(1980)
5. K. Vinjamuri, D.W. Akeers and R.R. Hobbins, "Examination of H8 and B8 Lead Srews from Three Mile Island Unit 2", GEND-INF-052(1987)
6. C.S. Carlson, D.W. Akers and R.K. McCardell, "Examination of Debris from the Lower Reactor Head of the TMI-2 Reactor", EGG-TMI-7573(1987)
7. D.E. Qwen, T.E. Cox and J.M. Broughton, "Fission Product Transport at Three Mile Island", Proceeding of the First International Information Meeting on the TMI-2 Accident", CONF-8510166, p.97, Germantown, MD, USA(1985)
8. M.L. Russell, "TMI-2 Accident Evaluation Program Sample Acquisition and Examination Plan", EGG-TMI-7132(1986)
9. D.W. Akers, E.R. Carlson, B.A. Cook, S.A. Ploger and J.O. Carlson, "TMI-2 Core Debris Grab Samples-Experimental and Analysis", GEND-INF-075(1986)
10. E.R. Carlson and B.A. Cook, "Chemical Interaction Between Core and Structure Materials", Proceeding of the First International Information Meeting on the TMI-2 Accident, CONF-8510166, p191, Germantown, MD, USA(1985)
11. B.A. Cook and E.R. Carlson, "TMI-2 Core Debris Analysis", Proceeding of the First International Information Meeting on the TMI-2 Accident, CONF-8510166, p77, Germantown, Md, USA(1985)
12. D.W. Akers and B.A. Cook, "TMI-2 Core Debris Grab Samples - Analysis of First

- Group of Samples" EGG-TMI-6630(1984)
13. D.W. Akers, S.A. Ploger, J.O. Carlson, E.R. Carlson and B.A. Cook, "TMI-2 Core Debris Samples Examination and Analysis", EGG-TMI-6835(Draft)
 14. G.O. Hayner, "TMI-2 H8 A Core Debris Sample Examination", GEND-060(1985)
 15. 이기순, TMI-2원자로 事故爐心の 손상거동, KAERI/OR-74/88(1988)
 16. 이기순, 로심손상 상태로 분석한 TMI-2원자로 사고, 원자력학회지, 20, 265(1988)
 17. EPRI, Nuclear Safety Analysis Center, "Analysis of Three Mile Island-Unit 2 Accident" NASC-1(1979)
 18. EPRI, Nuclear Safety Analysis Center, "Interpretation of TMI-2 Instrument Data", NASC-28(1980)
 19. S. Hagen, H. Malauschek, S.O. Peck and K.P. Wallenfels, "Temperature Escalation in PWR Fuel Rod Simulator Bundles due to Zircaloy/Steam Reaction Test", KfK-3508(1983)
 20. D.J.N. Taylor, "TMI-2 Self-Powered Neutron Detector-Data Interpretation" EGG-TMI(Draft)
 21. S.M. Jensen, D.W. Akers, R.W. Garner and G.S. Roybol, "Examination of the TMI-2 Core Distinct Components", GEND-INF-082(1987)
 22. 이기순, 이병휘, 원자력학회지, 18, 247 (1986)
 23. C.R. Carlson, Personal Communication, EG&G, Idaho Falls, ID, USA(1988)
 24. C.S.Olsen, Personal Communication, EG&G, Idaho Falls, USA(1988)
 25. R.S. Roth, T. Negas and L.P. Cook, "Phase Diagrams for Ceramists" Vol IV, American Ceramic Society(1981)