

EPMA를 이용한 PWR CRUD의 조성과 구조 및 형상의 분석

정양홍, 김희문, 유병옥, 안상복, 류우석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150
nyhjung@kaeri.re.kr

1. 서론

PWR 핵연료를 장주기로 운전하면 핵연료 cladding에 더 많은 Crud(Chalk River Unidentified Deposits) 덩어리가 발생되는 결과를 가져온다. 더 높은 235U enrichments의 핵연료를 사용하여 장주기 운전을 하게 되면 cladding 표면의 더 높은 최대 출력율과 (peaking factors) 와 더 큰 핵연료의 부냉 (sub-cooled)현상이 발생하게 된다. 이러한 핵연료의 특성과 핵연료 표면에 침적되는 현상은 clad와 직접적인 연관관계가 있다. 핵연료에 침적된 과도한 clad는 미국뿐만 아니라 전 세계적으로 많은 axial offset anomaly (AOA))를 야기할 뿐만 아니라, 몇몇 발전소에서는 비정상적인 화학적 반응에 의해 운전중지도 보고되고 있다.

핵연료의 crud 침적이 PWR 노심의 전력분포를 변화시킬 수 있다는 가설이 1970년대에 제시되었다. 상부 노심의 전력 저하가 Calvert Cliffs의 Obrigheim 1 and Unit 1에서 뚜렷하게 관찰되었다. 이 두 호기의 경우 과도한 crud의 침적과 관련하여 전력의 변화가 나타났다. 일차냉각수의 화학적 성질의 부적절한 조절에 의해 발생되는 부식은 침적물의 형성에 원인이 된다고 여겨졌다. 일차 냉각수의 화학적 성질을 실지로 향상시켰고, 노심전체의 crud가 전력을 변화시켰지만, 1989년 Callaway during Cycle 4.에서 노심 flux의 강하가 심해지기 전까지 미국의 PWR units에는 Crud에 대한 관심은 크지 않았다. 상부 노심 flux의 강하가 Callaway 뿐만 아니라 다른 PWRs에서 주기적으로 반복되어 발생하자 이러한 원인에 대하여 주의를 기울이기 시작했다.

본 시험에서는 상용발전소에서 채취한 crud와 사용후 핵연료 피복관에서 채취한 crud 시료에 대한 조성과 형상을 EPMA를 사용하여 분석하였다.

2. 실험 및 결과

1차, 2차 냉각수에 노출된 구조물에 나타날 수 있는 원소들을 Image Mapping 하였다. 1차 냉각수에 노출된 경우 관찰되는 원소는 B이 대표적이며, 2차 냉각수에 노출될 경우 관찰 될 수 있는 원소는 일반적으로 Cl, Na, Pb, S, Cu 등으로 알려져 있다.

EPMA에서 Image Mapping의 기능은 시험 시편에 입사된 전자빔이 궤도전자와 충돌될 때 생성되는 여러 가지 에너지들 중 특성 X-선의 발생량을 검출하여 특정 원소의 농도분포를 비교하는 기법이다. 그림의 오른쪽 색깔 띠는 농도의 상대적인 분포를 나타내는 색깔로서 제일 아래의 검은 색은 0 상태를 나타내며, 제일 위의 붉은색은 상대적인 농도분포가 가장 높음을 나타내는 그림이다.

제시한 그림의 첫째 줄인 C, Cl, N의 농도분포는 N원소가 미미하게 발견된다. 두 번째 줄의 Cr, Fe, Ni의 농도분포는 결정형상과 표면 기울기에 따라 나타난다.

특히 Fe의 경우 가운데 오른쪽에 짙은 노란색의 점이 보이는데, 이는 피복관의 CRUD에서 관찰되는 산화철로 추정된다. 같은 위치의 Ni 그림에서 Ni의 농도는 산화철에 가려져 낮은 분포를 보이고 있음을 알 수 있다. 이는 냉각수에 노출된 결함부위의 표면에 침상형의 물질 외에 CRUD 와 같은 물질도 침적 또는 흡착되었음을 의미한다.

피복재 표면에 침적되어 방사화 된 CRUD가 피복재로부터 이탈되어 냉각수로 방출되면서, 냉각수의 방사능 증가가 이루어진다. 이와 같이 냉각수의 방사능 증가를 억제하기 위하여 Sweden의 Barseback Kraft AB는 1999년부터 BWR 발전소에 Zn을 넣기 시작 하였다. 원자로 1차 냉각수에

넣은 Zn의 Image mapping 그림에서는 Zn의 농도가 그림처럼 거의 보이지 나타나지 않았다.

그림 35는 O에 대한 농도분포를 나타내었는데, 그림에서 보는바와 같이 O의 농도분포가 질다. 이는 주 원소인 Ni, Fe, Cr등의 산화물로 존재할 수 있음을 의미한다.

1차, 2차 냉각수에 노출된 구조물에 나타날 수 있는 원소들은 검출되지 않았다. 1차 냉각수에 노출된 경우 관찰되는 원소는 B이 대표적이며, 2차 냉각수에 노출될 경우 관찰 될 수 있는 원소는 일반적으로 Cl, Na, Pb, S, Cu 등으로 알려져 있다.

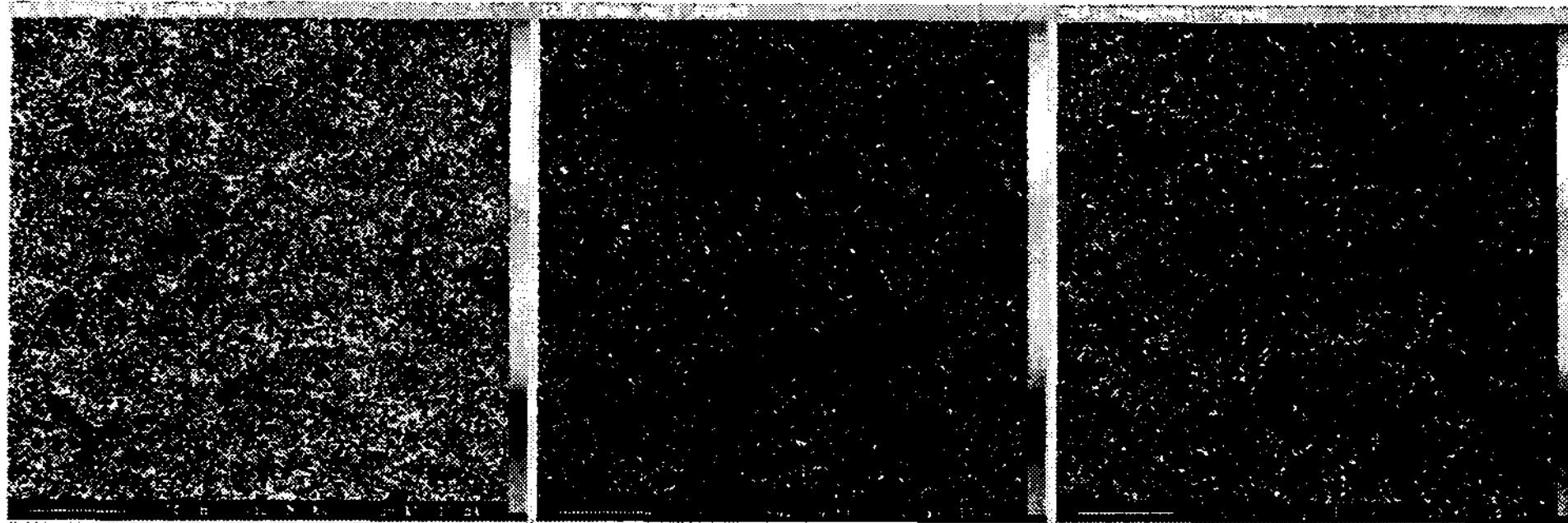


그림 1 N Ka

그림 2 Zn Ka

그림 3 B Ka



그림 4 Cr Ka

그림 5 Ni Ka

그림 6 Fe Ka

3. 결론

1차, 2차 냉각수에 노출된 구조물에 나타날 수 있는 원소들중에서 Cl, Na, Pb, S, Cu 의 분포는 극히 미미하였으나, Crud의 chemical 형태인 Spinel chemical form AB_2O_4 에서 가장 흔하게 분포되어 있는 $NiFe_2O_4$, 의 조성인 Ni, Fe 및 Cr원소의 분포를 확인하였으며 그 조성 및 분포를 관찰하였다.