

사용후 PWR 핵연료 피복관에서 채취한 CRUD Flake 분석

정양홍, 유병옥, 백승제, 안상복, 류우석

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Dujin-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-353, Korea
 nvhiung@kaeri.re.kr

1. 서론

가압 경수로에서 53,000 MWd/tU으로 연소된 사용후 핵연료 피복관 표면에서 채취한 CRUD Flake를 방사선 차폐형 성분분석기기(Shielded EPMA)를 사용하여 분석하였다. CRUD의 크기는 $W/L/t \approx 50/120/12\mu\text{m}$, Crud flake thickness는 $\approx 4\sim 25\mu\text{m}$ 로 관찰되었다. 또한 Boiling chimney hole size as $\approx 4\sim 6\mu\text{m}$ 로 뚜렷하게 관찰하였다. 이러한 결과는 원자력 선진국에서 CRUD와 관련된 시험결과에 상응하며, 또한 CRUD의 성분분포와 Image Mapping 시험도 수행하여 그 결과를 나타내었다.

2. 본론

국내 원자력 발전소의 주요기종인 가압경수로에서는 일차 냉각계를 통한 부식생성물인 CRUD (Chalk River Unidentified Deposit)의 이동에 의해 노심에서 방사화 된 후 노외표면에 침적된 방사성 핵종인 CRUD는 원전종사자 방사선 피폭의 주요원인이 된다. 따라서 부식생성물에 의한 방사성 피폭을 감소시키기 위해 CRUD의 정체성을 확인하기 위한 다양한 시험들이 진행되고 있다.

원자력 발전소 현장에서 채취한 시편은 63개를 한국원자력연구원 조사재시험시설(KAERI, IMEF)로 이송하여 시험을 진행하였다. EPMA, SEM 시편의 준비는 HIROX에서 확인한 부위를 가위로 오려 접착성이 좋은 카본 테이프에 붙인 후 탄소 증착기로 증착하였다 HIROX로 확인한 결과 크리드 시편은 드문하게 존재하였으며, 그 덩어리 숫자가 워낙 적어 ICP-MS등의 시편으로 사용할 수 없었다. EPMA WDS과 SEM기기를 사용하여 5개의 크리드 덩어리를 분석하였다. 전반적으로 아연과 보론의 농도는 미미하여 x-ray map으로 관찰이 불가하였다.

그림 1, 2, 3에서 보이는 바와 같이 Boiling Chimney hole이 나타난 부위는 1차 냉각재와 접촉되는 부위이며, 나머지 크리드의 보이는 부위는 피복관과 접촉부위로 판단된다. 냉각재와 접촉부

위의 표면 형상은 냉각재에 용존하는 크리드 물질들이 석출형태로 침적된 형태를 보이고 있다. 석출성 성장은 아주 작은 알갱이들이 점점 커지는 형상이지, 처음부터 큰 덩어리로 침적된 것은 아니다. 다른 덩어리의 크리드를 피복관과 접촉했던 부위의 크리드로 판단되는 것은 표면이 피복관과 접촉한 상태처럼 평평하고, Boiling Chimney hole이 선명하지 못하기 때문이다.

이 덩어리의 형상은 비교적 일정한 크기에 도달한 석출상들이 관찰된다. 이 덩어리의 WDS로 분석한 x-ray map을 보면, 덩어리의 상부가 하부보다 침적량이 많고, Fe는 비교적 균질한 분포를 보이나, O는 상부가 하부보다 높다. 피복관과 접촉한 덩어리의 중간에서 상부 방향으로 10 point WDS로 정량 분석한 결과를 표 1에 나타내었다. 각 분석 지점간의 거리는 $5\mu\text{m}$ 이며, 정량 분석 배율은 10,000배였다.

각 지점당 weight %는 분석지점 6에서 Ni의 농도가 높았고, 분석지점 10에서 Fe, Ni, O의 조성이 높게 나타남을 보이고 있다. 분석지점 10이 높은 이유는 시료의 침적량이 높아서 분석결과 전체 평균 조성 60 wt%중에서 87 wt%에 이를 만큼 높게 나오기도 하였지만, 산소의 농도는 X-ray map에서 나타낸 바와 같이 상대적으로 높은 농도를 나타내고 있다.

표 1에서 전체 평균은 Fe/Ni/O = 18/24/54의 비율을 보내고 있다. 니켈이 상대적으로 높은 분석지점 6의 조성비는 Fe/Ni/O = 11/30/56을 나타내며, 산소의 농도가 가장 높은 분석지점 10에서는 Fe/Ni/O = 18/16/64를 보이고 있다. 이는 일반적으로 알려진 크리드의 대표 조성인 NiFe_2O_4 의 조성비와는 많은 차이를 나타내며, 또한 부위별 조성비도 큰 차이를 보이고 있음을 알 수 있다.

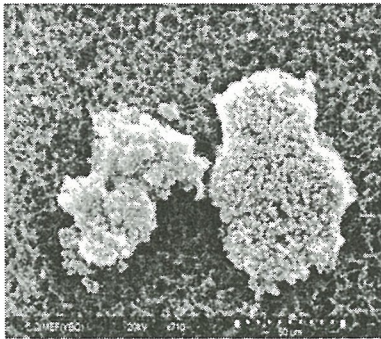


Fig. 1. CRUD Flake의 SEM.

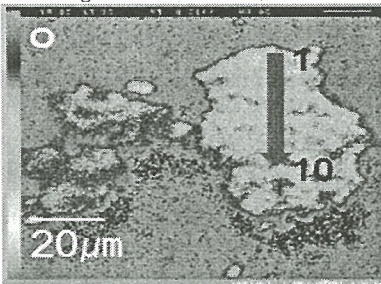


Fig. 2. CRUD Flake의 X-ray Map(O Ka).

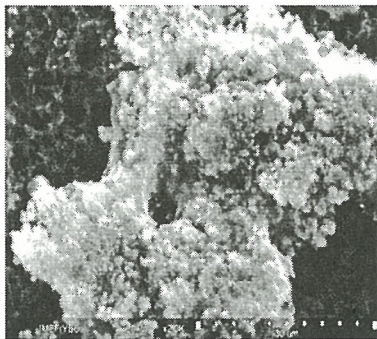


Fig. 3. sub-cooled nuclear boiling chimneys.

3. 결론

CRUD flakes 두께는 4-25 μm 로 확인되었다. Sub-cooled nucleate boiling chimneys의 직경은 4-6 μm 로 확인되었으며, 이는 원자력 선진국에서 확인한 전형적인 CRUD형태의 크기와 일치한다. CRUD Flake를 ICP-AES, EPMA를 이용하여 화학 분석 결과 Fe/Ni/O의 비율은 18/24/54이었다. 전형적인 Fe/Ni의 비는 1.3.으로 알려져 있는 CRUD의 조성비와 일치함을 확인하였다. 니켈이 상대적으로 높은 지점의 조성비는 Fe/Ni/O = 11/30/56을 나타내며, 산소의 농도가 가장 높은 분석지점에서는 Fe/Ni/O = 18/16/64이었다.

4. 참고자료

- [1] C. S. Olsen, "The performance of defected spent LWR fuel rods in inert and dry air storage atmospheres," Nuclear Engineering and Design, 89, 51 (1985).
- [2] D. L. Porter, "Chemical gradients in Crud on BWR Reactor Fuel Elements," INL/CON-07.
- [3] D. H. Lister, G. Venkateswaran, and N. Arbeau, "The kinetics of ^{60}Co uptake on and release from stainless steel with and without Zn addition under boiling water reactor conditions", Nuclear Technology, 140, 288 (2002).

Table 1. CRUD를 10 Point 정량분석 결과(wt%).

| | Fe | Ni | Cr | Zn | O | Total |
|-----|-------|--------|--------|--------|--------|--------|
| 1 | 14.61 | 28.633 | 2.152 | 0.928 | 12.511 | 58.843 |
| 2 | 17.60 | 22.726 | 1.832 | 0.724 | 10.244 | 53.129 |
| 3 | 15.95 | 19.63 | 2.036 | 0.651 | 9.489 | 47.76 |
| 4 | 24.06 | 26.498 | 2.196 | 0.882 | 15.353 | 68.994 |
| 5 | 17.66 | 29.384 | 2.148 | 1.008 | 12.048 | 62.252 |
| 6 | 12.42 | 32.734 | 1.764 | 0.773 | 16.836 | 64.532 |
| 7 | 14.93 | 17.281 | 1.825 | 0.812 | 11.631 | 46.485 |
| 8 | 13.02 | 16.608 | 1.536 | 0.809 | 17.537 | 49.51 |
| 9 | 17.38 | 20.262 | 2.104 | 0.566 | 23.745 | 64.062 |
| 10 | 27.57 | 26.89 | 3.091 | 0.746 | 28.535 | 86.833 |
| Ave | 17.52 | 24.064 | 2.0684 | 0.7899 | 15.792 | 60.24 |