

‘2003 추계학술대회 논문집

한국원자력학회

INFRA 코드를 이용한 고연소도 핵연료 rim 두께 및 Xe 감소 예측 (Prediction of High Burnup Fuel Rim width and Xe Depletion by INFRA code)

양용식, 이찬복, 김영민, 김대호

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 사서함 105호 305-600

요약

Rim 구조의 생성 및 핵분열 생성 기체 거동과의 연관성은 고연소도 핵연료의 성능과 안전성에 큰 영향을 끼친다. Rim 구조의 생성을 정확히 평가하기 위해 핵연료 온도, 결정립 크기 및 fission rate등을 종합적으로 고려하여 rim 구조가 생성되는 임계 연소도를 예측할 수 있는 모델을 INFRA 코드에 삽입하였다. 또한, 기존의 연구결과들을 검토하여 rim 영역에서의 핵분열 기체 거동을 모사할 수 있도록 핵분열 기체 방출 모델을 개선하였으며 rim 두께 및 Xe 감소를 측정된 BK365와 12C3 연료봉 시험 결과를 이용하여 INFRA의 예측 결과를 비교하였다. 비교 결과, INFRA에 사용된 모델은 rim 생성이 완료된 시점을 판단하기 때문에 rim 구조 생성이 진행중인 transition 영역에서는 측정치와의 차이가 발생하였으나 완전히 rim이 생성된 영역의 두께 및 내부의 Xe 분포 예측치는 측정치와 잘 일치하였다.

Abstract

Relationship between rim microstructure formation and fission gas behavior is a important phenomenon for high burnup fuel performance and safety. For prediction of rim microstructure formation, recently proposed threshold burnup model, which is function of fuel temperature, grain size and fission rate, inserted in fuel performance code INFRA. Fission gas release model has been modified to describe fission gas behavior in rim region. BK365 and 12C3 test rods, which were performed EPMA analysis to find Xe depletion in rim region and rim width, were compared with INFRA prediction results. Because INFRA model could not consider transition situation from as-fabricated structure to rim microstructure, some errors occurred in Xe depletion amount prediction. But rim width and Xe depletion prediction in fully developed rim region show a good agreement with measured data

1. 서론

경수로 원자로의 중성자 스펙트럼 분포 특성상 핵연료 외각에 생성되는 rim 구조는 구조적 특성이 기존 UO_2 구조와는 상이하며 열적/기계적 거동 또한 매우 복잡하기 때문에 많은 연구자들이 관심을 가져왔고 핵연료 평균 연소도가 증가하는 현재 추세에서는 그 중요성이 더욱 증가하고 있다.

Rim 구조에 대한 지속적인 연구결과 다양한 rim 생성 mechanism이 제안되었으며 구조의 특성 및 거동에 대한 많은 실험 결과들이 발표되었지만 rim 구조를 발생시키는 결정적인 원인과 rim 영역에서의 핵분열 기체 거동을 정확히 분석할 수 있는 이론은 아직 정립되어 있지 않다.

본 논문에서는 핵연료 성능평가 코드 INFRA에 적용된 rim 생성 mechanism 및 이를 바탕으로 유도된 rim 생성 임계 연소도(threshold burnup) 모델을 소개하고 이를 이용하여 예측한 rim 두께 및 핵분열 기체 생성물의 분포를 HBEP(High Burnup Effects Program), Siemens사의 시험자료들을 통하여 측정된 결과와의 비교/검토를 수행하였다.

2. Rim microstructure structure

Rim 구조 생성 mechanism

그동안의 연구 결과 국부연소도가 70~80MWd/kgU에 도달하면 rim 구조가 생성되기 시작하는 것으로 알려져 있으며[1] rim 영역에서는 기존의 결정립 크기가 대폭 축소되어 submicron 단위의 결정립이 생성되고 결정립 주변에는 평균 크기 1micron의 기포가 균일하게 생성되어 매우 높은 기공도(15~22%)를 가지는 것으로 알려져 있다[2]. 그림 1에는 rim 구조가 생성되기 전/후의 SEM분석 사진이 나타나 있으며[3] 그림 2에는 다양한 연구자들에 의해 수행된 핵연료 연소도에 따른 rim 두께의 변화가 나타나 있다.

그러나 rim 구조의 특성이 비교적 상세히 밝혀진 것에 비해 생성 원인은 아직 정확히 밝혀지지 않았으며 많은 연구자들에 의해 다양한 생성 mechanism이 제안되고 있다. INFRA에 사용된 rim 임계 연소도모델은 결정립내의 핵분열 기체가 포화되는 시점을 rim의 생성 시점으로 하는 최근에 발표된 mechanism을 기반으로 하고 있다[4].

우라늄 원자의 핵분열시 발생한 핵분열 생성물들은 매우 높은 운동에너지를 지니고 핵연료내에서 운동을 하게 되는데 이때 발생하는 주변 원자들과의 충돌에 의해 운동 궤적주변의 원자들은 위치를 벗어나게 되고 구조적 결함이 발생한다. 이때, 핵분열 기체 생성물들이 이러한 결함에 모여 핵분열 생성물이 진행한 궤적 주변에는 매우 작은 크기의 기포($\sim 10^{-9}m$)들이 대량으로 형성된다.

생성된 기포는 주변의 다른 기포와의 결합, 핵분열 생성 기체들의 포획등을 통하여 내부 압력이 증가하게 되며 주변의 기공(vacancy)를 포획하는 성장을 통해 증가하는 내부압력과 평형을 유지한다. 그러나 핵연료의 온도가 낮아 포획되는 핵분열 기체 원자수에 비해 기포가 성장할 만한 기공의 양이 부족하거나 특정 크기 이상으로의 성장이 제한되면 기포가 과포화 되어 주변의 구조에 큰 압력을 가하게 된다.

핵분열이 진행된 결정립은 조사손상의 누적으로 구조의 건전성이 많이 떨어지기 때문에 이러한 기포의 압력에 의해 구조적 변화를 일으키게 된다(grain subdivision). 또한, grain subdivision동안 방출된 방대한 양의 핵분열 기체가 다시 기포에 포획되어 기포의 압력을 증가시켜 다시 grain subdivision이 발생하는 과정을 반복하면서 전체 구조가 변화를 일으키고 rim 구조가 생성된다[4]. 따라서, rim 영역의 생성은 단순히 국부연소도 뿐만이 아니라 rim 영역의 기포를 생성되는 핵분열 기체 임계농도에 크게 영향을 받게 된다.

핵분열 기체 임계 농도

결정립내부의 핵분열 기체 임계농도는 핵연료 온도, 결정립 크기 및 fission rate에 의해 크게 영향을 받기 때문에 rim 생성 임계 연소도 또한 같이 영향을 받게 된다. 핵연료 온도의 상승은 결정립 내부에 존재하는 핵분열 기체들의 확산을 가속화시키고 결정립계로의 방출을 증가시키기 때문에 높은 연소도까지 임계 농도에 도달하지 못하게 하는 반면 fission rate의 증가는 핵분열 기체의 일정 시간동안 존재하는 핵분열 기체의 양을 증가시켜 낮은 연소도에서도 임계 농도에 도달할 수 있도록 한다.

핵연료 온도나 fission rate의 영향과 달리 결정립의 크기는 서로 상반되는 변화를 일으킬 수 있다. 큰 결정립 핵연료의 경우 핵분열 기체가 확산해야하는 거리가 증가하기 때문에 핵분열 기체의 방출이 줄어들며 이로 인해 결정립 내부의 존재하는 핵분열 기체의 양이 증가하여 낮은 연소도에서도 임계 농도에 도달할 수 있다. 하지만 일부 연구자들의 연구결과에서는 큰 크기의 결정립은 작은 결정립에 비해 surface to volume 비가 작기 때문에 결정립계로부터 시작되는 grain subdivision을 지연[5]시킨다는 연구결과를 발표하고 있기 때문에 정확한 영향 평가를 위해서는 추가적인 연구가 필요하다. 그림 3에는 핵연료 온도, 결정립 크기 및 fission rate에 의한 임계 연소도 변화가 나타나 있다.

Threshold burnup for rim microstructure formation

앞에서 언급한 바와 같이 rim 생성 임계 연소도는 핵연료 온도, 결정립 크기 및 fission rate에 크게 영향을 받으며 이에 대한 정확한 풀이를 위해서는 복잡한 과정을 거쳐야 한다. 그러나 일반적 상용원자로 조건에서는 소결체 결정립은 크기는 대략 $10\mu\text{m}$ 이며 fission rate는 $5.1 \times 10^{23} \text{atoms/m}^3$ 으로 일정하기 때문에 threshold burnup은 핵연료 온도만의 함수로 표현할 수 있으며 이에 대한 식은 다음과 같다[6].

$$Bu_{rim} = 71 + 0.00108 \exp\left(\frac{T}{109.3}\right)$$

여기서 Bu_{rim} (Mwd/kgU)은 rim 생성을 위한 임계 연소도이고 T(K)는 핵연료 온도이며 그림 4에는 이 모델에 의해 계산된 임계 연소도가 나타나 있다.

3. Effects of rim microstructure

열전도도 감소

Rim 구조의 높은 기공도(15~20%)는 열전도도를 감소시켜 핵연료 온도를 상승시키는 영향을 끼치지만 grain subdivision에 의해 발생하는 결정립 내부의 핵분열 기체 감소는 열전도도를 증가시킨다. 기공도 증가에 의한 열전도도의 감소는 대략 23%, 결정립 내부 핵분열 기체방출로 인한 열전도도의 증가는 18%정도인 것으로 나타나고 있으며 이에 따른 전체 변화는 약 9%정도로 열전도도의 큰 감소는 없는 것으로 나타난다[6]. Halden에서 수행된 고연소도 핵연료 시험 결과에서도 70Mwd/kgU까지 rim 구조 생성으로 인한 뚜렷한 열전도도의 감소는 관찰되지 않았다[7].

핵분열 기체 거동

Rim 구조의 특성을 나타내는 가장 큰 현상이 결정립내 Xe양의 감소이다. EPMA(Electron Probe Micro Analyzer)를 통한 관측 관측결과에서는 핵분열 반응에 의해 발생한 결정립내부의 Xe이 낮은 핵분열 기체 방출률에도 불구하고 대부분 결정립내에 존재하지 않는 것으로 나타나고 있으며[8] XRF, TEM등을 통해 관찰한 결과 방출된 핵분열 기체는 외부로 방출되지 않고 주변에 존재하는 기포에 대부분이 포획되어 있는 것으로 나타났다.

연구자들의 연구결과에 의하면 일반적인 rim 구조의 기공도(15~20%) 이하에서는 대부분의 핵분열 기체가 외부로 방출되지 않고 기포내에 존재하는 것으로 나타났으며 24%이상의 기공도에서는 open porosity 비율의 급격한 증가로 rim내의 핵분열 기체도 방출된다는 연구결과도 발표되고 있다[9]

현재까지 알려진 연구결과를 종합하면 일반 상용로 핵연료들은 rim 구조가 핵분열 기체 방출에 끼치는 영향은 rim 영역이 핵연료 최외각 국부적인 곳에 한정되며 대부분의 기체 생성물들이 기포에 포획되어 있기 때문에 크지 않다고 할 수 있다. 그러나 평균 연소도가 70Mwd/kgU이상인 고연소도 환경에서는 rim 영역이 크게 발달하기 때문에 영향을 끼칠 수 있으며 특히, RIA(Reactivity Initiated Accident)와 같은 출력의 급변화시에는 대량의 핵분열 가스를 포함하고 있는 rim 결정립계의 기포 균형의 파괴와 핵연료에 발생하는 crack등의 영향으로 대량의 핵분열 기체 방출이 발생할 수 있다.

3. INFRA 핵분열 기체 방출 모델 변경

INFRA에 사용된 핵분열 방출 모델은 확산 방정식에 기반을 둔 모델로서 결정립 내부에서 발생한 핵분열 기체의 결정립계의 이동은 Booth의 확산 모델과 동일한 방법을 통하여 계산을 수행하며 결정립계로의 이동량을 결정하는 가장 주요한 인자인 확산 계수는 개선된 Turnbull의 3 term 모델을 사용하고 있다[10].

결정립 표면으로 이동한 핵분열 기체는 외부와 연결된 open surface에 도달하는 경우 외부로 방출되며 나머지는 결정립계에 존재하는 기포에 포획된다. 기포에 포획된 핵분열 기체는 임계 농도이상에서 open channel과의 연결을 통해 외부로 방출되고 외부와 연결된 기포는 결정립 표면의 open surface를 증가시키는 인자가 된다. 따라서 결정립계에 도달한 핵분열 기체의 방출을 결정하는 가장 큰 인자는 기포가 포함할 수 있는 핵분열 기체 생성물의 임계 농도, 전체 결정립 표면에서 open surface가 차지하는 비율 및 포화시 기포가 open channel과 연결되는 비율이며 다양한 시험 결과와의 비교/검증을 통해 유도된 최적의 상수를 사용하고 있다.

Rim 영역의 핵분열 기체 거동 평가를 위해서는 기존 연구자들의 연구결과와 검증에 사용된 핵연료 시험 자료를 검토하여 다음과 같은 가정을 하였다.

- rim 영역 생성 시점에서 결정립 크기 감소 및 결정립계 기포의 포화농도 증가
- rim 생성 시점에서 결정립 표면의 open surface는 초기화되어 존재하지 않음
- 결정립계로부터의 방출은 기존의 INFRA 핵분열 기체 방출 모델과 동일

4. 시험 자료와의 비교

HBEP BK365 핵연료봉

HBEP(High Burnup Effects Program)의 일환으로 수행된 BK365 핵연료 시험은 annular 소결체를 사용한 PWR형 핵연료로서 BR-3 test reactor에서 1587 EFPD동안 조사되었다. 봉평균 연소도 69.4MWd/kgU에서 인출된 핵연료봉의 첨두 연소도는 약 83MWd/kgU이었으며 핵분열 기체의 방출량은 3.8%인 것으로 나타났다. 미세조직 관찰을 위한 시편은 연소도 67, 83MWd/kgU인 영역에서 각각 1개씩 채취되었으며 결정립 내부의 Xe 감소를 관찰하기 위한 EPMA 분석 및 결정립계 기포내에 포획되어 있는 핵분열 기체의 양을 평가하기 위한 XRF 분석이 수행되었다[8].

Siemens 12C3 핵연료봉

Siemens사에서 수행된 핵분열 기체 방출 시험은 15x15형 상업용 핵연료를 이용하여 수행되었다. 1993년부터 10주기에 걸쳐 수행된 이 시험은 약 40여개의 핵연료를 연소시키면서

주기말마다 일정량의 핵연료봉을 인출하여 조사후 시험을 수행하였다. 최종적으로 인출된 12C3 핵연료봉은 봉평균 연소도 100MWd/kgU에 도달하였으며 핵분열 기체 거동 평가를 위한 시험이 수행되었다. 12C3 핵연료봉 역시 미세조직 검사를 위해 연소도 69, 102MWd/kgU 영역에서 두개의 시편이 채취되었으며 Xe 감소를 관찰하기 위한 EPMA 분석과 rim 구조의 특성 파악을 위한 정밀 SEM 분석이 수행되었다[3].

INFRA 입력 작성

BK365의 제작조건 및 운전이력은 비교적 상세하게 데이터베이스에 수록되어 있기 때문에 정확한 입력을 작성할 수 있었으며 12C3 핵연료봉은 대략적인 핵연료 제원 및 운전이력만이 공개되어 있기 때문에 제공되지 않은 정보는 일반적인 상용 PWR의 운전 조건 및 핵연료 제원을 사용하여 계산을 수행하였다. BK365 계산결과 축방향 2번째와 5번째의 연소도가 시편이 채취된 영역과 일치하는 것을 확인하였으며 각각의 위치에서의 핵분열 반경방향 위치 및 rim 두께와 측정치를 비교하였다.

12C3 핵연료봉은 축방향 1번째와 13번째 구간의 연소도 및 높이가 시편이 채취된 영역과 일치하였으며 같은 방법으로 시험 자료와의 비교/평가를 수행하였다.

5. 평가 결과

그림 5에는 BK365 핵연료의 1번(83MWd/kgU)시편에서 측정된 결정립 내부에 남아있는 Xe의 양과 INFRA의 예측치가 나타나 있다. 1번 시편의 경우 중심부의 center hole 표면에서도 rim 구조의 생성이 시작되었음을 나타내는 미세 결정립이 발견되었으며 중심에서 0.56지점부터 핵연료 외곽 표면까지는 전체 구조가 rim 구조로 바뀌어졌다[8]. INFRA의 예측치는 핵연료 중심으로부터 전체 구조가 완전히 rim 구조로 바뀌는 transition 영역에서는 측정치에 비해 높은 양을 예측하는 것으로 나타났으며 완전히 rim 구조로 바뀐 영역에서는 측정치와 잘 일치하고 있다.

INFRA rim 모델은 앞에서 언급한 바와 같이 rim 생성 임계 연소도를 계산하는데 여기서의 임계 연소도는 rim 구조로의 변화가 완료된 연소도를 의미한다. 따라서, 구조의 변화가 진행중인 transition 영역에서 발생하는 Xe의 감소는 정확히 모사하지 못하고 있다. 이러한 경향은 그림 6에 나타나 있는 2번(67MWd/kgU) 시편의 경우에서도 나타내는데 rim 구조가 아직 생성되지 않은 영역과 완전히 rim 구조로 변화한 영역의 측정치는 비교적 잘 예측하지만 transition 영역에서는 많은 오차를 나타내고 있다.

Rim 구조로의 변화가 완료된 영역의 범위(rim width)에 대한 예측에서는 두 시편 모두 실측치와 INFRA의 예측치가 잘 일치하고 있으며 이는 INFRA에 사용된 rim 생성 임계 연소도 모델이 정확한 것을 알 수 있다.

전체적인 핵분열 기체 방출에 대한 예측치는 2.0%로서 측정치인 3.8%와 큰 차이를 나타내지 않았다. BK365 핵연료봉의 핵분열 기체 방출량을 일반 핵연료봉들과 비교할 때 동일연

소도의 다른 핵연료봉들에 비해 rim은 매우 발달한 반면 핵분열 기체 방출량은 크게 차이를 보이지 않았으며 이를 통해서도 rim 영역의 생성이 핵분열 기체 방출에 크게 영향을 끼치지 않는 것으로 알 수 있다. 이러한 결과는 EPMA 검사와 함께 측정된 XRF 검사를 통해서 알 수 있는데 rim 구조 생성에 의해 결정립 내부에서 방출된 핵분열 기체의 대부분이 결정립계의 기포에 포획되어 있는 것으로 밝혀졌다.

그림 7과 8에는 Siemens사 12C3 시험 핵연료봉의 1번(102MWd/kgU), 2번(69MWd/kgU) 시편에 대한 결정립계 내부 Xe의 양과 INFRA의 측정치가 함께 나타나 있으며 BK365 핵연료봉과 마찬가지로 transition 영역에서 측정치와 예측치의 차이가 크게 나타났다. 또한 이 시편들의 결과에서는 rim 구조가 생성되지 않은 영역에서도 차이가 발생하고 있는데 이는 핵분열 기체 방출량의 예측 오차로부터 발생한 것으로 판단된다.

1번 시편의 경우 0.2~0.45 구간은 rim 구조가 전혀 관찰되지 않은 영역임에도 불구하고 대량의 Xe이 감소한 형태를 나타내고 있는데 이는 전체 10주기동안의 운전기간동안 4주기까지 핵연료의 중심온도가 높은 온도(>1200°C)를 유지하였기 때문이다. 이러한 고온에서는 확산에 의한 핵분열 기체 방출이 활발히 진행될 수 있기 때문에 결정립내부에 남아있는 Xe의 양이 적은 것이며 이 영역에 대한 INFRA의 핵분열 기체 방출예측이 실제보다 작기 때문에 측정치에 비해 많은 Xe이 남아 있는 것으로 예측한 것이다. 그러나 2번 시편의 경우에는 이와 반대의 경우가 나타났는데 중심부에서의 핵분열 기체 방출량을 INFRA가 높게 예측해서 측정치에 비해 Xe의 양이 적게 예측되고 있다.

Rim 두께의 예측에서는 그림 7과 8에서 나타난 바와 같이 EPMA 및 SEM 분석을 통해 밝혀진 완전히 rim으로 변환된 영역과 INFRA의 예측치가 잘 일치하는 것으로 나타났다.

6. 결론

핵연료 온도, 결정립 크기 및 fission rate를 종합적으로 고려하여 rim 구조가 생성되는 임계 연소도를 판단하는 모델을 INFRA 코드에 삽입하고 고연소도 핵연료의 rim 두께 및 내부의 Xe 감소를 측정된 두개의 시험 핵연료봉 실험 결과를 이용하여 비교/평가를 수행하였다. 비교 결과 두개의 핵연료봉 모두 rim 구조의 생성이 진행되고 있는 transition 영역에서는 rim 생성 임계 연소도모델의 특성상 정확한 Xe 감소를 예측하지 못하였지만 rim 구조로 완전히 변환된 영역의 두께 및 그 영역에서의 Xe 감소는 잘 예측하는 것으로 나타났다.

향후 임계 연소도 모델의 보완을 통하여 transition 영역에 대한 예측이 수행된다면 rim 영역 및 핵분열 기체 방출거동에 대한 정확한 평가가 가능할 것으로 판단된다.

7 후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.

8. 참고 문헌

- [1] M. E. Cunningham et al., J. Nucl. Mater. 188 (1992) 73
- [2] S.R. Pati et al., Proc. Int. Topical Meet. on LWR Fuel Performance, Williamsburg, Virginia, USA, (ANS 1988) p204.
- [3] R. Manzel, C.T. Walker, J. Nucl. Mater. 301 (2002) 170-182
- [4] C.B. Lee, et al., J. Nucl. Mater. 279 (2000) 207-215
- [5] K. Nogita, et al., J. Nucl. Mater. 248 (1997) 196
- [6] C.B. Lee, et al., ANS 2001 Winter Meeting
- [7] H. Devold, in:Proceeding of Enlarged Halden Program Group Meeting, HPR-349, 1998.
- [8] M. Mogensen, J. Nucl. Mater. 264 (1999) 99-112
- [9] Y.H. Koo, et al., J. Nucl Mater. 321 (2003) 249-255
- [10] L.C. Bernard, et al., J. Nucl. Mater. 302 (2002) 125

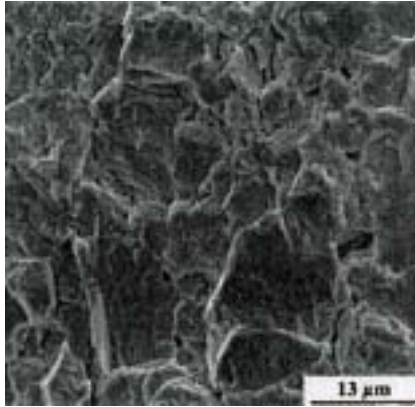


그림 1(a). Rim 구조 생성 전

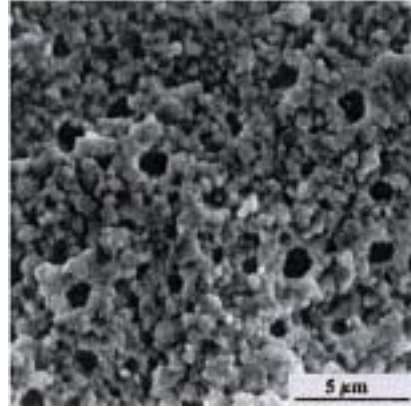


그림 1(b). Rim 구조 생성 후

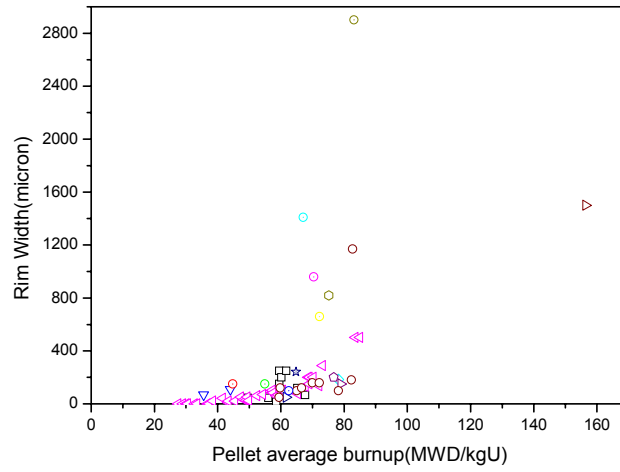


그림 2. 핵연료 연소도에 따른 rim 두께의 변화

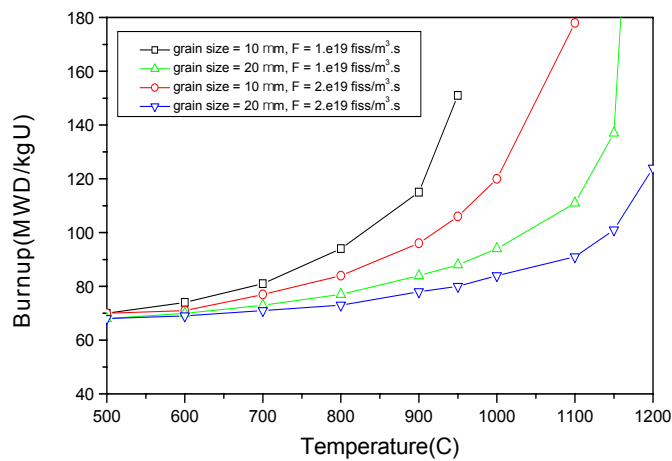


그림 3. 온도 변화에 따른 rim 생성 임계 연소도 변화

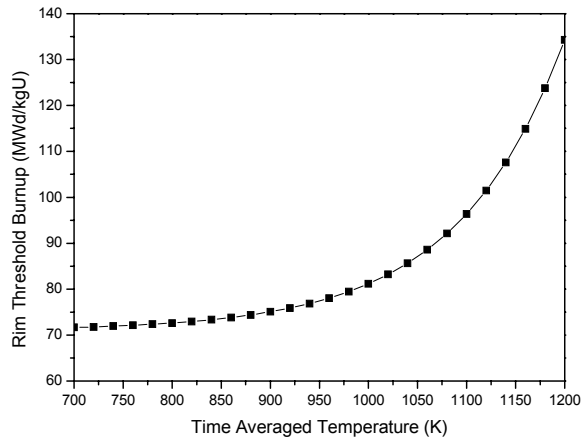


그림 4. 핵연료 온도에 따른 rim 생성 임계 연소도의 변화

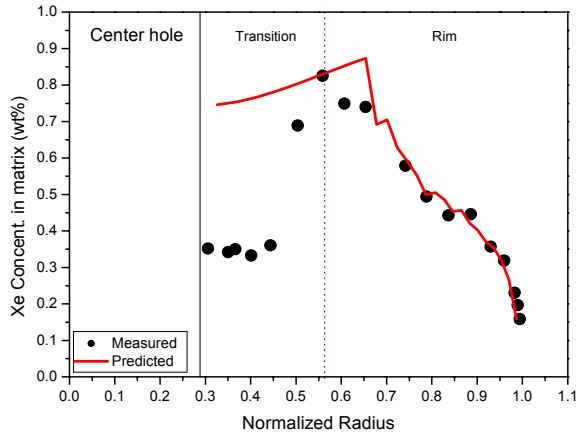


그림 5. BK365 1번 시편의 Xe 분포 및 rim 두께

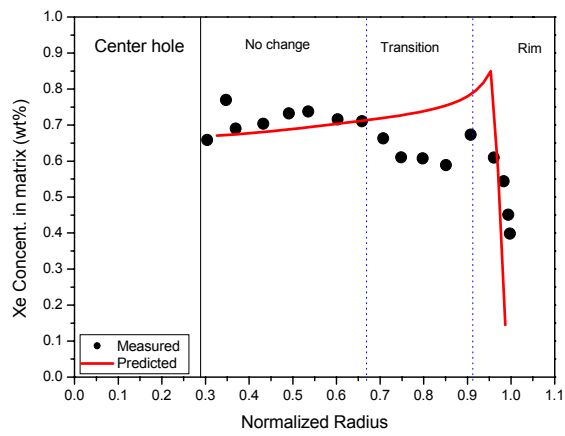


그림 6. BK365 2번 시편의 Xe 분포 및 rim 두께

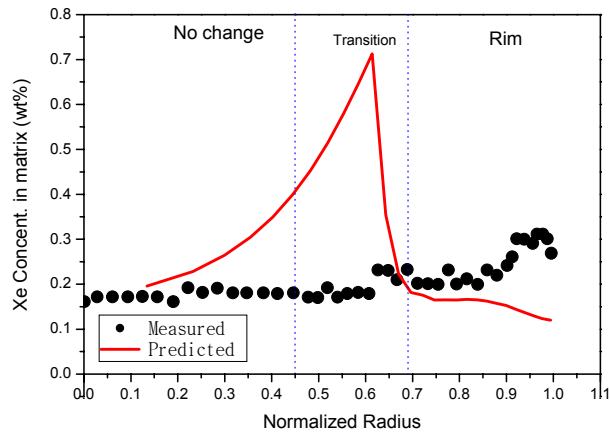


그림 7. 12C3 1번 시편의 Xe 분포 및 rim 두께

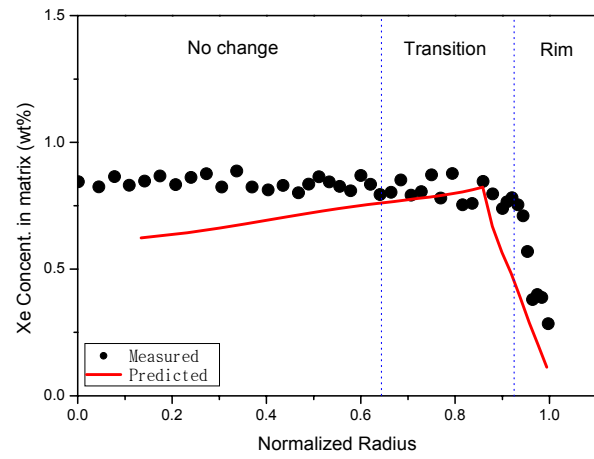


그림 8. 12C3 2번 시편의 Xe 분포 및 rim 두께