2001 춘계학술발표회 논문집

한국원자력학회

조사후 단결정 핵연료의 핵분열 기체 확산계수 측정 연구
Fission Gas Diffusion Coefficient Measurement of Irradiated Urania Fuel Single Crystals

김희문, 박광헌

경희대학교
경기도 용인시 기흥읍 서천1리

김봉구, 송근우, 김건식, 주용선, 홍권표, 강영환

한국 원자력 연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

핵분열 기체의 확산 계수를 단결정 핵연료 분말을 이용하여 측정하려는 목표로 본 연구를 수행하였다. 시편은 단결정 천연 UO_2 분말 형태를 사용하고, 감마선 측정기의 효율에 맞춰 중성자 조사량 및 시편 무게의 최적값을 계산하여 조사량을 정하였다. 조사할 핵연료의 시편의 질량 및 중성자 조사량은 ORIGEN-2를 사용하여, 감마선 측정시 요구되는 시편에서의 감마선 방출량을 갖도록 다음의 기준으로 $m\phi t = 2.0\times10^{16}$ (g/cm^2)을 설정하였다. HEATING 7.2를 사용하여 조사되는 핵연료의 온도와 캡슐의 주요부위 온도를 측정하여, 캡슐의 재료 및 형태와 시편 무게를 설정하였다. 300 mg의 단결정 핵연료 시편을 하나로 HTS 조사공에 넣어 20분간 조사를 시켰다. 캡슐재료는 Quartz 관과 Al봉을 이용하였다. ORIGEN-2를 사용하여 감마선 방출 휘발성 핵분열 기체 생성물의 냉각기간별 발생량을 비교하여 최적 냉각기간을 7일후로 설정하였지만 높은 방사선량으로 인해 25일이 지나서야 시편 개봉을 하였다. 장비구축에 필요한 주요 설계 및 실험방법이 설정되었고 장비는 제작 완료되어 IMEF에 설치되었다.

Abstract

The goal of this study is measurement of fission gas diffusion coefficient of urania single crystal. The specimen is Urania single crystal powder. Irradiation amount is calculated as considering efficiency of gamma-detector and weight of specimen by using ORIGEN-2 code. Then Equation of Irradiation amount was made as $m\phi t = 2.0\times10^{16}$ (g/cm^2). Heating 7.2 code was useful to calculate temperature of Capsule containing specimen during irradiation in HTS hole of HANARO research reactor. Finally 300mg specimen was irradiated for 20 minutes. Capsule materials are Quartz and Aluminum. Cooling time after irradiation was set up by 7 days as analysis of fission gas isotope amounts using ORIGEN-2 code, but high dose caused cooling time to extend as 25days. All of equipments for annealing test were already set up in IMEF facility.

1. 서 론

가동중인 원자로내의 핵연료는 조사에 의해 핵분열기체가 생성된다. 이 핵분열 기체는 온도에 의해 확산되어 피복관 틈새로 방출되며 핵연료의 열전도도를 떨어뜨린다. 이로인해 핵연료의 중심 온도가 상승하게 되어 핵연료봉의 건전성을 떨어뜨리게 된다. 따라서 핵분열 기체방출모형의 중요성이 부각되고 여러 가지 모형이 연구되고 있다. 지금까지 연구된 모형들의 주요 공통된 인자는 바로 핵분열 기체의 확산계수라고 할 수 있다. 이 확산계수는 많은 실험을 통하여 측정되고 있으며 핵연료 종류와 조건에 따라 다양한 확산계수값들이 나타나고 있다. 본 논문은 국내 최초로 단결정 천연 우라늄 분말을 하나로에 조사하여 핵분열 기체의 확산 계수를 구하는 것을 목표로 수행된 연구결과를 나타낸 것이다.

핵분열 기체 방출은 여러 기구(mechanism)가 복합적으로 섞여 있으므로, 핵분열 기체의 근본 물성인 핵연료 내 확산 계수는 정확히 측정되어야 할 중요한 항목이다. 단결정 핵연료에서 핵분열 기체 확산 계수 측정은 소결체 matrix 내 핵분열 기체 이동을 비교적 간단히, 그리고 정확히 측정할 수 있는 연구이며, 측정된 자료는 핵연료의 연소 중 거동을 기술하는데 널리 유용하게 사용될 수 있는 중요한 물성치이다.

2. 본 론

2.1 실험 장비 설계 및 제작 개요

본 실험 장치는 고온에서의 시편가열을 위한 히터부분과 방출된 기체를 포집하여 측정할 수 있는 Trap 부분으로 나눌 수 있다. 그림-1에서 보듯이 히터내의 하단부분은 시편을 올려 놓는 알루미나 봉이 있고 이것이 상하이동이 용이하여 시편을 장착하기가 쉽게 설계되었다. 히터는 최고 1650℃까지 온도제어가 가능하고 시편에서 방출되는 핵분열 기체는 비활성 기체에 실려 Trap에 석출되게 하였다. Trap의 재질은 분자체(Molecular sieve)이며 체의 크기는 5Å이다. 이것을 액화질소에 넣어 핵분열 기체를 포집하게 된다.(그림-2참조) Trap부분의 배관 및 용기는 모두 유리로 만들었으며 여기에 분자체가 들어가게 되고 액화질소로 냉각하게 된다. 모든 핵분열 기체는 액체질소의 비등점(-196℃)에서 고화되어 Trap에 고체로 석출된다.[1](표-1 참조) 아울러 핵분열 기체의 방출을 Trap까지 흐름을 유도하는 이송 기체는 He 기체를 사용하는데, He 기체의 비등점이 액화질소의 비등점보다 낮으므로 액화질소상에서도 He은 기체로 존재하게 된다.

표 1 포집핵종과 Trap 물질의 끓는점 및 녹는점

구 분	He	Ar	Xe	N
끓는점(℃)	-268.9	-185.8	-108.0	-195.8
녹는점(℃)	-269.7	-189.4	-111.9	-210

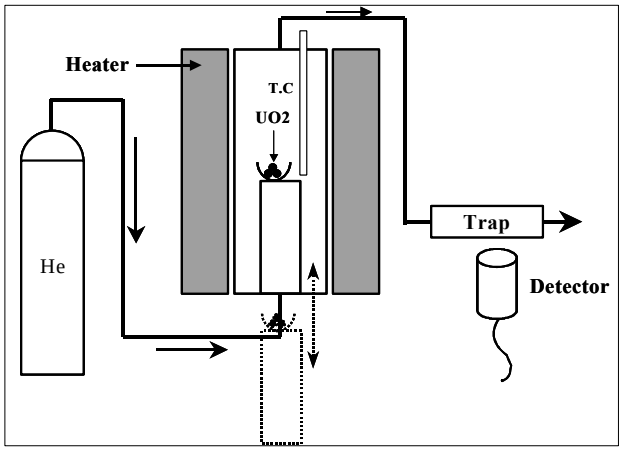

그림 1 실험장비 개요

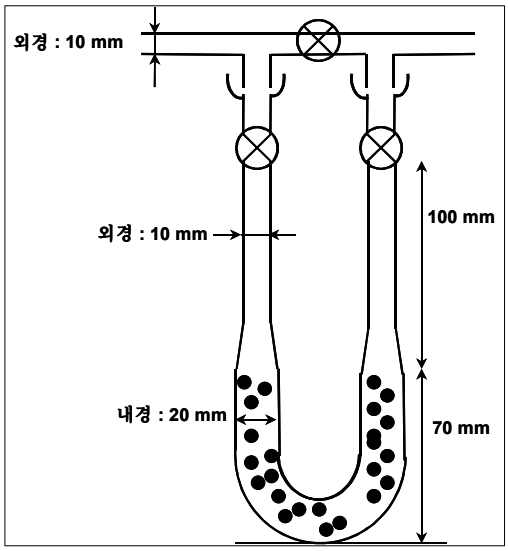

그림 2 TRAP 구조

2.2 핵분열 기체중 감마선 방출 주요 핵종의 방출 분포 예측

본 실험은 조사후 핵연료를 고온으로 가열하므로서 방출되는 핵분열기체의 감마선량을 측정하여 확산계수값을 측정하고자 한다. 핵분열 기체의 방출량은 감마선 측정을 통하여 얻어지게 된다. 실험에 앞서 핵분열성 기체의 종류와 그 중에서도 감마선을 방출하는 핵종을 파악하고 그 핵종들의 시간에 따른 거동을 알아보려 한다.

그림-3,4,5는 ORIGEN-2 코드를 이용하여 UO_2 1g을 조사 10분후부터 발생된 핵분열성 기체들이며 특히 감마선을 방출하는 핵종들의 거동을 나타내었다.

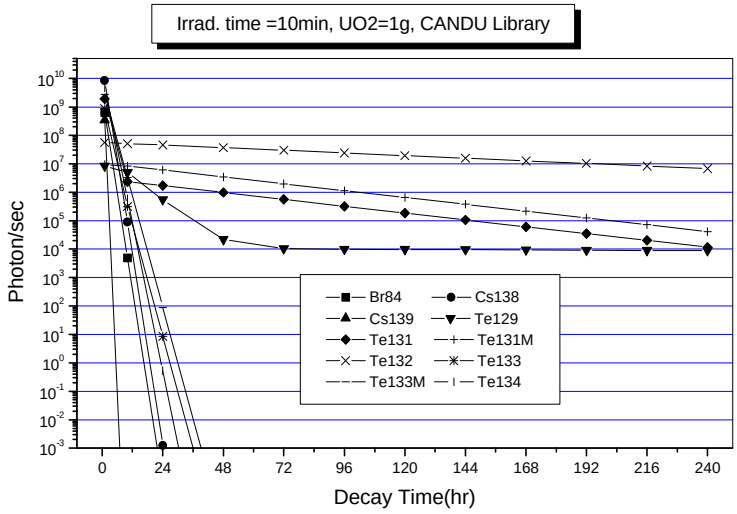

그림 3 냉각시간에 따른 주요 관심핵종(Br, Cs, Te)의 감마선 방출량

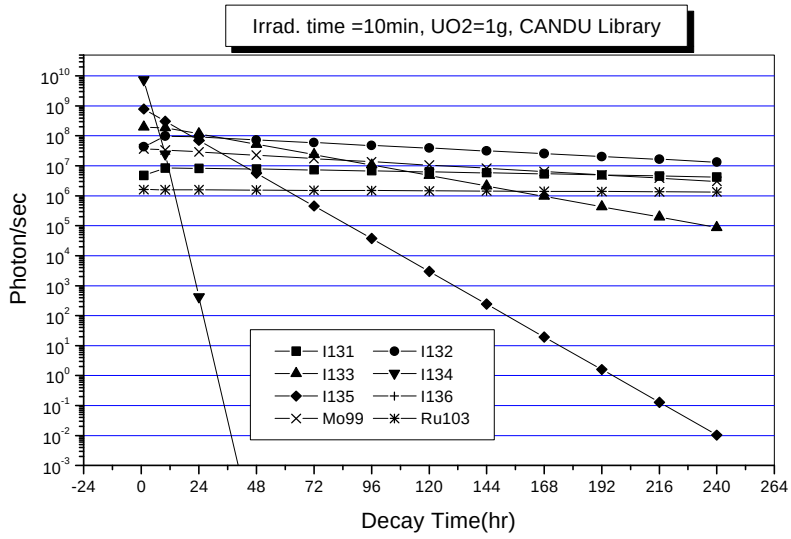

그림 4 냉각시간에 따른 주요 관심핵종(I, Mo, Ru)의 감마선 방출량

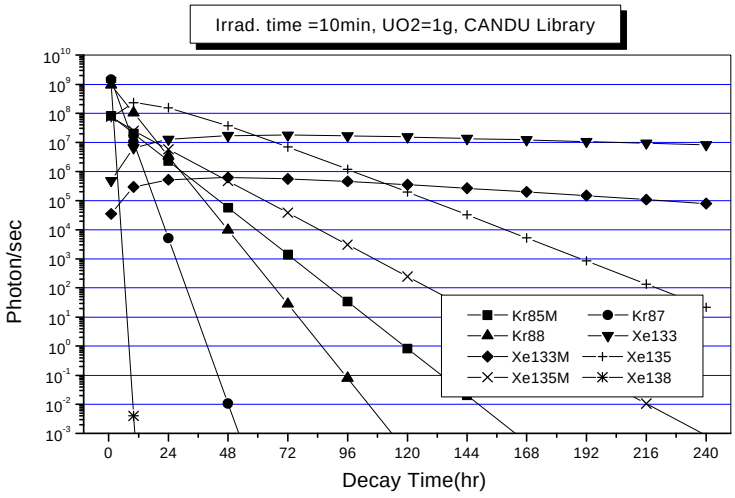

그림 5 냉각시간에 따른 주요 관심핵종(Kr, Xe)의 감마선 방출량

본 계산에서 관심을 갖는 감마선 방출 핵종은 약 36종이다. 이중에서 단위시간당 감마방출량이 높으면서 시간에따라 방사능량을 유지하는 측정가능한 핵종은 Te-132, I-131, Xe-133, Mo-99, Ru-103 이다. 본 실험에서도 이 다섯 핵종에 대해서 측정하고자 한다. 이 다섯핵종을 측정하기 위해선 다른 핵종으로인한 측정기의 노이즈 현상을 줄여하는데 그래프에서 보듯이 7일이후부터 핵종의 감마선량의 차이가 나기 시작하므로 측정기의 측정 효율면에서 볼 때 측정시점을 조사후 7일후에 하는 것이 적합하다고 본다

위에서 언급한 5가지 측정 대상 핵종에 대해서 아래와 같이 각각의 감마선 에너지와 붕괴사슬을 나타내었다.

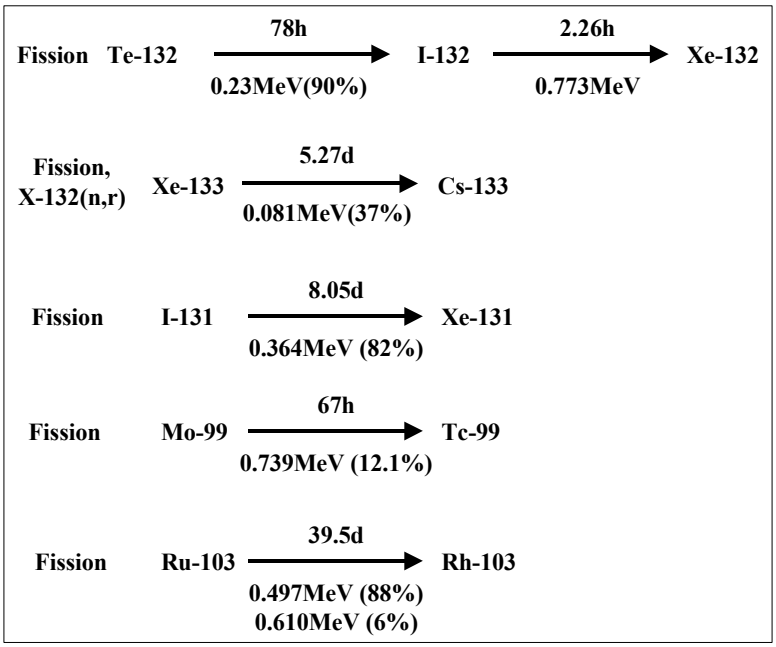

그림 6 5가지 측정 대상 핵종의 감마에너지 및 붕괴사슬

그림-6에서 보듯이 각 핵종의 유효 감마에너지는 다중파고분석장치의 채널 설정을 예측할 수 있고, 반감기 및 측정하고자하는 에너지의 방출확률(Branch Ratio)를 파악하므로서 실험 측정시간 및 측정치를 예측할 수 있다. 따라서 본 Annealing 실험에서 시간에 따른 방출측정은 Xe-133을 측정 대상 핵종으로 했고 나머지 핵종은 Annealing 실험 전후의 감마 스펙트럼의 분석으로 평가하려 한다.

2.3 단결정 핵연료 제조 및 분석

ADU (Ammonium Di-Uranate) 공정으로 제조한 UO_2 분말을 사용하였고, 이것을 3 t/cm^2 압력으로 압축하여 성형체를 제조하고 성형체를 1700℃에서 4시간동안 수소기체 분위기에서 소결하여 UO_2 소결체를 제조하였다. 소결체는 직경 8 mm 높이 10 mm 이고, 물부력법으로 구한 밀도는 97% TD (Theoretical density, 10.96 g/cm^3) 이고, 직선교차법으로 구한 결정립 크기는 7.5 ㎛ 이다. 소결체 결정립 조직사진을 그림-7,8,9에 나타내었다.

UO_2 소결체를 산화해서 얻는 U_3O_8 분말을 다시 UO_2 분말로 환원한 후 이것을 이산화탄소 분위기에서 1300, 1400, 1500℃에서 각각 4시간동안 annealing 하고 환원하여 UO_2 단결정을 제조하였다. 이산화탄소 분위기는 hyperstoichiometric (UO_{2+x}) 상태를 유지하여 우라늄 확산을 촉진하기 위함이다. 이 조건에서 얻는 UO_2 단결정을 그림-10에 나타냈다. 여기서는 단결정에 균열은 발생하지 않았으며, 단결정의 크기는 1500℃/4시간에서도 10 ㎛ 정도의 크기를 갖는다

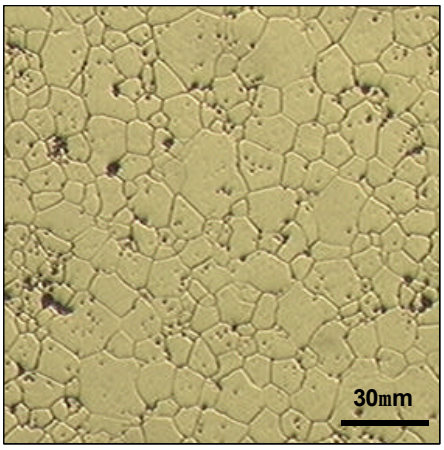

그림 7. UO_2 소결체의 결정립 조직.

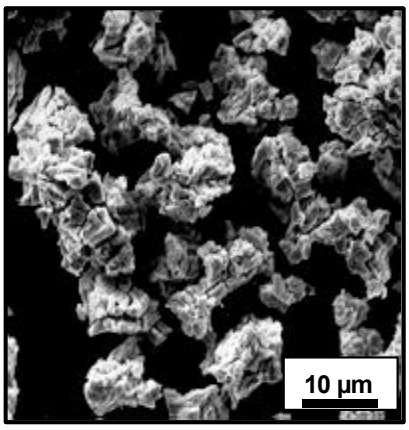

그림 8. UO_2 소결체를 공기중에서 산화해서 얻는 U_3O_8 분말.

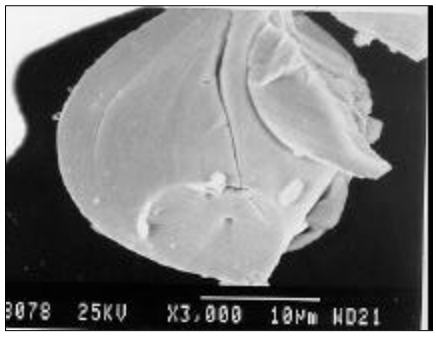

그림 9. U_3O_8 단결정을 환원할 때 발생한 균열.

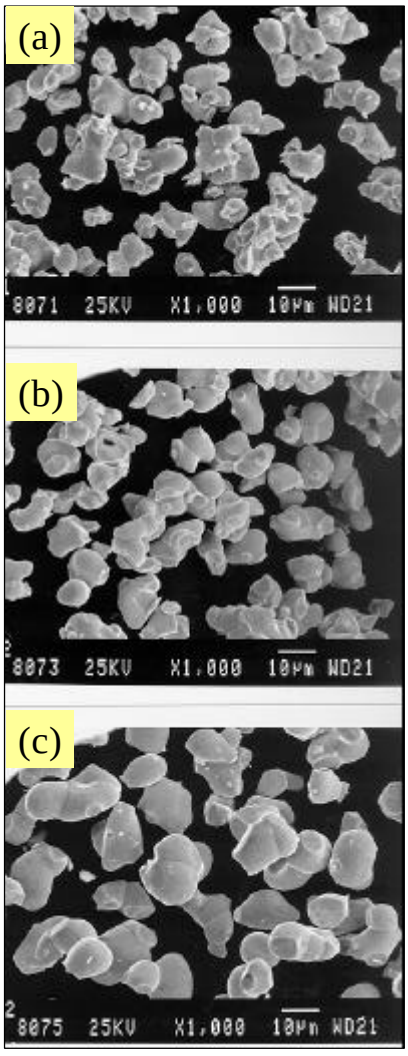

그림 10. CO_2 분위기에서 annealing 온도에 따른 UO_2 단결정 형상.(a)1300℃/4시간, (b)1400℃/4시간 (c)1500℃/4시간

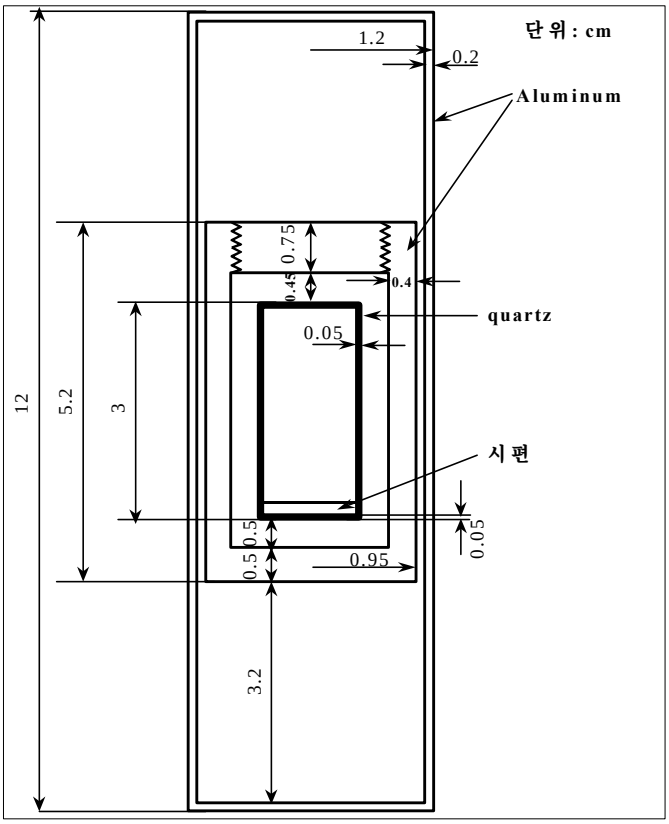

그림 11 알루미늄 밀봉 캡슐 구조

2.4 UO_2 단결정 시편 조사량 및 조사시간 설정

본 연구에서 만들이진 핵연료는 천연 우라니아를 사용한 단결정 분말형태이다. 이것을 하나로 원자로에 넣고 조사를 하여 핵분열 기체를 고르게 시편내 분포시킨다. 시편을 조사시킬 때 핵연료의 누출 우려를 고려해서 밀봉캡슐을 사용한다. 시편이 분말형태이므로, 시편을 석영관에 진공으로 밀봉하고 이것을 다시 알루미늄관으로 밀봉한 다음 캡슐에 넣어 조사공에 장전하여 조사하였다. (그림-11참조). 이렇게 시편을 밀봉하여 조사하게되면 조사시간과 중성자속에 따라 열이 발생되므로 이에 대한 핵적,열적 계산이 수반되어야한다. 그 계산결과에 따라 안전성을 유지할 수 있는 조건, 즉 조사시간과 시편의 양을 결정하게 된다.

핵적 계산으로 ORIGEN-2[2]를 그리고 열적 계산은 HEATING 7.2[3] 코드를 사용하였으며 시편 및 밀봉캡슐의 안전성을 고려하여 온도의 안전 조건을 표-2와 같이 정하였다. 알루미늄 및 석영관은 열충격을 고려하여 안전성을 유지하는 최고온도를 용융점(K)의 1/2값 이하로 설정하였다.

표 2 코드 계산에 따른 밀봉 캡슐 및 봉인관의 안전 온도 조건

구 분	석영관	알루미늄
용융점 또는 변형점	1200℃	660℃
안전성 상한온도	400℃	190℃

본 연구에선 ORIGEN-2 코드로 하나로에서 주어진 중성자속을 이용하여 열출력을 계산하고, HEATING 7.2는 ORIGEN-2 코드에서 주어진 열출력하에서 시편이 조사될 때 주변 기하구조에 따른 각 위치에서의 온도분포를 구하였다.

온도 분포를 계산하기위해 우선 ORIGEN-2 코드를 이용하여 열출력을 구해야 하는데 문제는 정확한 하나로의 반응단면적 라이브러리 자료가 없는 관계로 하나로와 유사한 CANDU 천연우라늄 라이브러리를 사용하였다. 그러나 실질적인 차이를 알아보기 위해 하나로 연구팀에서 MCNP 코드를 이용하여 계산한 비열출력(specific power)과 비교해 볼 때 약 26%정도 낮은 비열출력값을 나타내고 있어서 약 26%의 오차범위에서 연구를 수행하였다.

그리고 HEATING 7.2의 신뢰성 평가를 위해 기계분야에 널리 쓰이고 있는 FLUENT[4] 범용코드를 이용하여 비교해보았다. 열출력이 2.52×10^{-2} W 인 UO_2 10mg을 알루미늄 및 래빗 밀봉캡슐에 1시간동안 과도상태로 계산을 해본결과 그림-12,13과 같은 결과를 얻었다. 이때 초기 온도 조건은 30℃이다. 아래 표-3는 HEATING 7.2의 결과이고 30분과 60분일때의 결과를 FLUENT 코드와 비교해볼 때 30분에서는 핵연료에서의 온도차이는 거의 없으며 60분일 때 핵연료에서 약 1℃ 정도 온도차이를 보였다. 따라서 HEATING 7.2와 FLUENT에서의 오차율은 거의 2% 미만이며 HEATING 7.2의 코드가 충분히 사용될 수 있음을 확인하였다.

표 3 HEATING 7.2 코드를 이용한 위치에 따른 온도분포

시간	핵연료	quartz	Al-내부	래빗 내부
30분	34℃	34℃	30.8℃	30.6℃
1시간	35℃	35℃	31.5℃	31.3℃

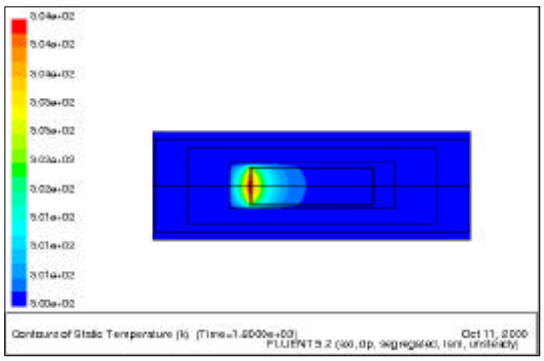

그림 12 FLUENT 코드를 이용한 온도분포 (30분)

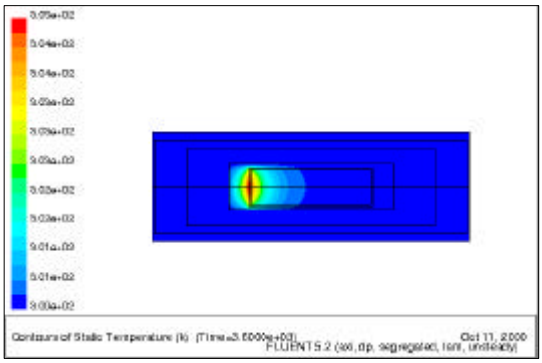

그림 13 FLUENT 코드를 이용한 온도분포 (1시간)

시편과 석영관, 밀봉캡슐의 안전 온도를 고려하여 최적화할 있는 시편의 무게, 조사시간, 그리고 중성자 조사량를 계산해 보았다. 계산의 시작은 우선 측정기의 효율성부터 시작하였다. 본 연구에서 측정하고자하는 핵종 중 핵분열 기체의 방출에 가장 핵심적인 기체 핵종은 Xe 이고 이중에서도 감마선을 방출하며 반감기가 긴 것은 위에서도 언급했듯이 Xe-133이다. 시편의 조사량을 설정하기 위하여 다음과 같은 기준을 설정하였다. 조사후 7일간 냉각시킨 시편에서 Xe-133 의 10%가 방출되어 Trap에 축적되었을 때 30cm 거리에서 10 photons/cm^2.sec 의 값을 갖게 하는 조

사량으로 설정하였다.

본 실험에서 조사기간이 매우 짧으므로 측정하려는 감마선속은 중성자속에 거의 무관하고 총 중성자 조사량(Fluence)에만 비례한다. 그림-14는 1g의 천연 이산화 우라늄 시편을 조사시킨후 7일간 냉각시키고 나서 시편내 Xe-133의 10%가 Trap에 갇혀있을 때 30cm 떨어진 지점에서 측정되는 감마선량의 변화를 중성자 조사량에 따라 나타낸 것이다.

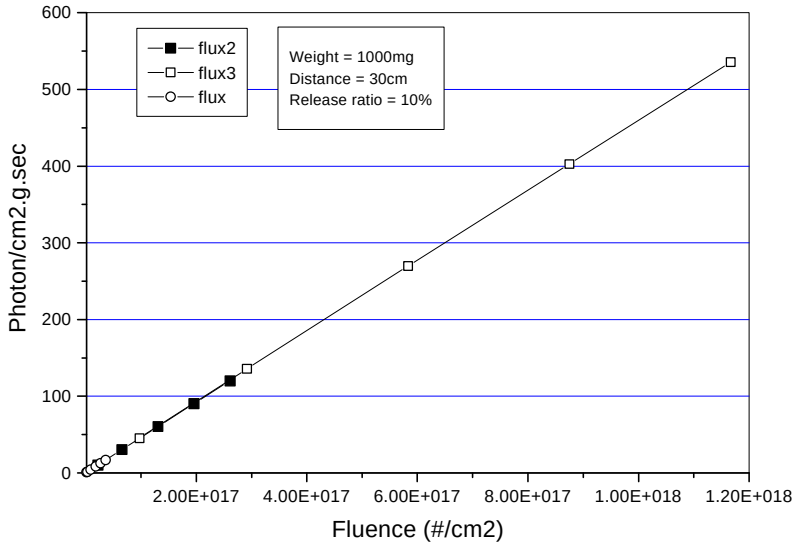

그림 14 중성자 조사량에 따른 감마선량

그림-14에서 보듯이 측정하려는 감마선속은 조사시 중성자속에 거의 무관한 것으로 나타나 있다. 따라서 그림-14에 나타나있는 감마선 방출량인 10 photons/cm^2.sec 기준에 맞는 플루언스값은 2×10^{16} photon/cm^2이고, 이값을 조사량의 기준으로 설정하였다. 따라서 본 실험에서 사용하는 시편의 무게와 중성자 조사량은 다음의 식으로 나타낼 수 있다.

$$m\phi t = 2.0\times10^{16} \qquad \text{식(1)}$$

여기서 m 은 시편의 무게(g)이고 ϕt 는 중성자 조사량(#/cm^2)이다.

위의 식(1)를 이용하여 하나로의 HTS 조사공의 중성자속에서 조사되는 여러 시편의 무게와 조사시간을 구하였다.(표-4 참조)

표 4 시편무게에 따른 조사시간 및 열출력 (HTS 조사공)

무게(g)	플루언스(#/cm2)	조사시간(분)	q'''(w/cm3)
0.01	2E+18	407.498	63.3
0.05	4E+17	81.49959	
0.1	2E+17	40.7498	
0.2	1E+17	20.3749	
0.4	5E+16	10.18745	
0.8	2.5E+16	5.093725	
1	2E+16	4.07498	

ORIGEN-2에서 구한 열출력 및 식(4.1)을 이용한 조사시간을 이용하여 HEATING7.2 코드로 시편과 밀봉체의 구조 형태를 적용, 물질의 각위치에서 온도를 알아보았다.(그림-15) 이때 모든 밀봉체 사이의 공기는 밀봉체의 크기가 작기 때문에 대류가 없다고 보고 열전도도만 고려하였으며 최외각의 밀봉캡슐의 외벽은 완전단열이라고 가정하였다. 초기 온도조건은 60℃로 하였다.

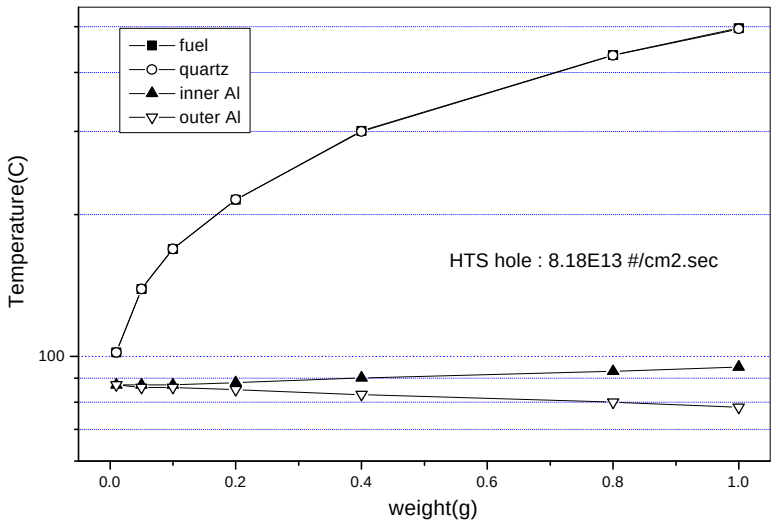

그림 15 HTS 조사공에서의 조사 시편 무게에 따른 주요 부위의 온도

위의 계산결과를 볼 때 시편의 무게는 200~400mg이 적당하며 조사시간을 비교해볼 때 약 10~20분정도이므로 조사시간으로서는 최적 조건이라고 볼 수 있다.

2.5 조사후 시편의 방사능선량 평가

시편의 조사에 있어서 앞에서 언급한 안전성 고려는 조사시 시편의 고온으로 인한 원자로 냉각수로 유출되는 것을 막기 위한 온도 계산이었다. 이번에는 조사후 시편의 냉각시간에 따른 방사능정도와 고온에 의한 방출실험시 측정기의 위치에서 피폭 선량을 알아볼 필요가 있다. 이 계산에 사용한 코드는 역시 ORIGEN-2 코드를 사용하였으며 특히 감마선 체폐에 대한 계산은 Micro-Shield[5] 코드를 사용하였다.

그림-16는 HTS 조사공에서 무게와 냉각시간에 따라 방사능량을 계산한 결과이며 조사직후에서 방사능량이 무게에 대해 서로 약 2배정도의 차이를 보이지만 이것은 매우 짧은 반감기를 가지 핵종의 생성량 차이이지만 냉각후 곧 소멸되어 전체 방사능량이 모두 같게된다.

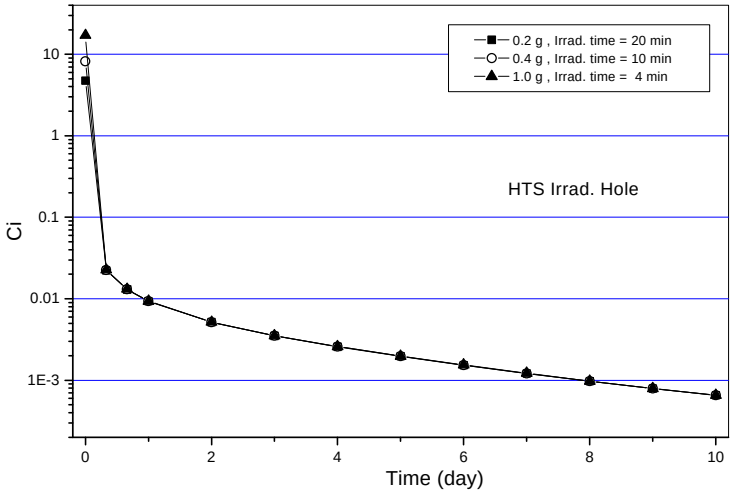

그림 16 냉각시간 및 시편 무게에 따른 방사능량

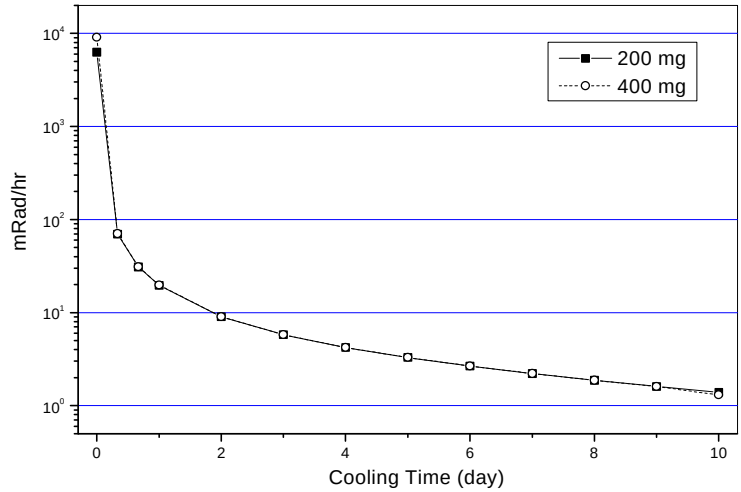

그림 17 선량률 계산

시편의 조사직후부터 냉각시간에 따라 선량값을 Micro-Shield를 이용하여 계산해보았다. 선원항은 점-선원으로 보고 공기중에 30 Cm정도 떨어졌을 경우를 가정하여 선량계산을 하면 그림-17과 같은 결과를 얻었다

ICRP-60 권고치인 작업종사자의 1년동안의 선량 한도인 2 rem와 비교를 위해 그림-17와 같이 7일후의 흡수선량이 2.213 mRad/hr 이므로 본 실험의 최대 실험시간을 15시간이라고 하면 33.195 mRad 이고 조직의 가중치 인자를 1로 보았을 때 거의 0.033 rem 정도의 값이 나오므로 실험시 피폭에 대한 안전하다고 볼 수 있다.

그러나 본 실험에서 석영관에 들어있는 시편을 알루미나 용기에 담기위해 직접 손으로 작업을 해야하므로 이때의 방사선량을 계산할 필요가 있다.

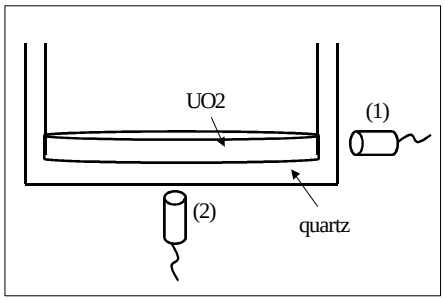

그림 18 시편의 선량평가

그림-18과 같이 (1)번 위치와 (2)번 위치에서의 접촉 선량 및 10cm 거리에서의 선량을 계산하였다. 이때 시편의 무게는 300mg이고 quartz의 두께는 0.1cm 이고 UO_2의 반경은 0.4cm 그리고 UO_2 높이는 0.07cm 정도로 가정하여 아래 표-5와 같이 냉각기간이 12일째와 13일째의 선량을 나타내었다. (1)번위치에서는 선원항을 실린더형으로 보았고 (2)번위치에서는 선원항을 disk 형태로 묘사하였다.

표 5 위치 및 거리에 따른 선량률 계산

	냉각 기간	접촉 선량(mrad/hr)	10cm 위치에서의 선량(mrad/hr)
(1)번 위치(실린더 선원항)	12일	8.95E3	11.76
	13일	8.10E3	10.71
(2)번 위치(disk 선원항)	12일	3.3E4	18.01
	13일	2.9E4	16.11

위의 계산 자료로 볼 때 접촉 선량이 워낙 높아서 시편을 알루미나 용기에 옮기기가 어려워 냉각시간을 더 연장하게 되었고 20일째에 측정기에 의한 측정값이 표-6처럼 나타나서 시편을 25일째에 알루미나 용기에 옮겼다.

표 6 시료의 선량 측정값

냉각 기간	납용기표면	알루미늄표면	유리벽
8일	20mR/hr		
20일	10 mR/hr	250mR/hr	170mR/hr

2.6 시편의 감마스펙트럼 분석

시편을 Annealing 하기에 앞서 시편의 감마선을 방출하는 핵분열성 물질들의 종류와 양을 분석하였다. 측정시간은 약 30분정도이고 그 결과를 ORIGEN-2 코드의 결과와 비교하였다.(그림-19,20 참조)

그림에서 보듯이 측정 결과와 코드 결과를 비교해 볼 때 I-132의 최고점이 어느 정도 일치 함을 알 수 있지만 나머지 핵종에 대해서는 판별하기가 아직 어려운 실정이다. 특히 측정값에서 나

타난 여러 가지 최고점들에 대해서 핵종 분석에 어려운 점이 있다.

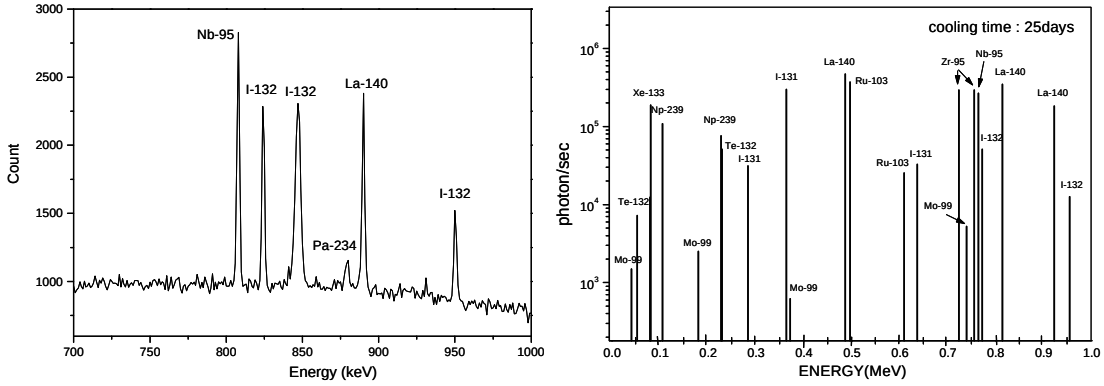

그림 19 측정결과와 ORIGEN-2의 값 비교(< 1MeV)

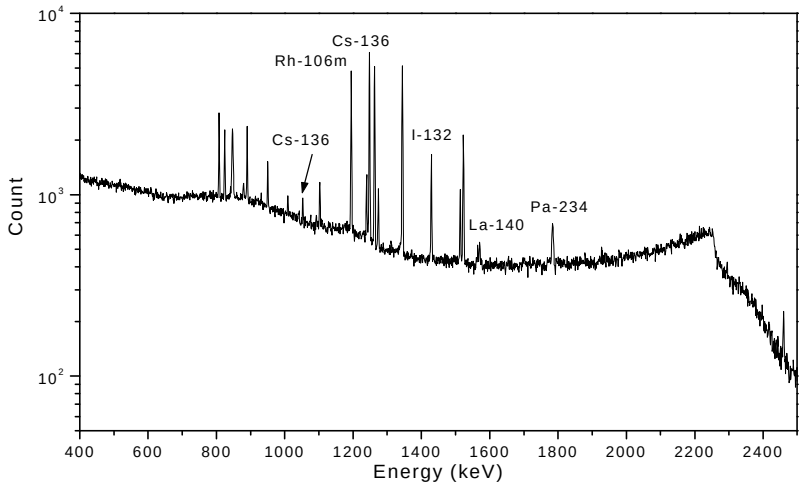

그림 20 측정 결과값

또한 IMEF 시설내의 기본 감마선량이 높으므로 그림-19,20과 같이 몇몇 핵종들만이 확인할 수 있었으며 대부분은 I-132와 La-140 핵종이 주류를 이루고 있다. 측정 대상 핵종인 Xe-133에 대해서 감마에너지가 낮은 영역인 81KeV이므로 백그라운드를 줄여 측정하는 방안이 고려되어야 한다.

3. 결 론

1) Annealing 실험장비는 1650℃까지 온도를 올릴수 있도록 제작되었으며 Trap장치도 외국의 자문 및 자료를 입수하여 설계 제작하여 Annealing 장비와 함께 하나로 IMEF 시설내에 설치하였다.

2) 감마선을 방출하는 본 연구의 관심 핵분열성 기체 핵종은 약 36종이다. 시간에 따라 방사능량을 유지하는 측정가능한 핵종은 Te-132, I-131, Xe-133, Mo-99, Ru-103 이며 ORIGEN-2 코드를 이용하여 측정시점을 계산한 결과, 조사후 7일후에 하는 것이 적합한 것으로 나타났다.

3) 시편 제작은 UO_2 소결체를 산화해서 얻는 U_3O_8 분말을 다시 UO_2 분말로 환원한 후 이것을 이산화탄소 분위기에서 Annealing 하고 환원하여 UO_2 단결정을 제조하였다. 단결정의 크기는 10 ㎛ 정도의 크기를 갖는다.

4) 시편을 조사하기전 안전성 계산을 위해 ORIGEN-2 코드 및 HEATING 7.2 코드를 사용하여 캡슐 및 시편의 온도분포를 알아보았고 시편의 무게 및 조사시간을 아래식과 같이 설정하였다.

$$m\phi t = 2.0 \times 10^{16} \ (g/cm^2)$$

위의 계산에 따라 시편 무게는 300 mg이고 조사시간은 20분으로 정하여 하나로 HTS 조사공에 장전하여 조사를 하였다.

5) 조사후 25일 냉각된 시편의 감마 스펙트럼을 측정하였다. 높은 백그라운드로 인해 몇몇 핵종만을 확인할 수 있었다. 측정 대상 핵종인 Xe-133에 대해서는 감마에너지가 81KeV정도의 낮은 에너지이므로 백그라운드를 줄일 수 있는 측정 방법을 연구하고 있다.

4. 참고문헌

1) S.Ravel,E.Muller,G.Eminet,L.Caillot,'Partition of Grain Boundary and Matrix Gas Inventories : Results Obtained Using The Adagio Facility', International Seminor on Fission Gas Behavior in Water Reactor Fuels.(2000)

2) RSIC Computer Code Collection - ORIGEN 2.1-, Oak Ridge National Laboratory, (1980)

3) K.W.Childs, HEATING 7.2 USER'S MANUAL, ORNL/TM-12262,(1993)

4) FLUENT 5.4 Code, ATES INC.

5) Microshield 3 Code, Grove Engineering, Inc., (1987)