

고연소도 핵연료의 핵분열 기체 팽윤 모델 Modelling of Fission Gas Swelling of the High Burnup Fuel

김대호, 이찬복, 방제건, 정연호

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

가압경수로용 UO_2 고연소도 핵연료의 정상 및 과도상태에서 핵분열 기체에 의한 핵연료 팽윤을 예측하기 위한 모델이 개발되었다. Greenwood-Speight의 기포성장 모델을 근거로 온도와 시간 그리고 연소도에 따른 함수로 경험적 모델식을 유도하였다. 유도한 모델식에 따르면, 핵분열 기체에 의한 핵연료 팽윤은 연소도의 1.157 지수승과 시간의 0.157승에 비례하였다. 다양한 온도 및 연소도 조건에서 수행된 핵분열 기체 팽윤 실험자료와 비교한 결과 개발된 핵연료 팽윤 모델은 실험자료를 비교적 잘 예측하였다.

Abstract

Fission gas swelling model which can predict bubble swelling of the high burnup UO_2 fuel during the steady-state and the transient conditions in LWR was developed. Based on the bubble growth model by Greenwood-Speight, the empirical fission gas swelling model was developed as function of burnup, time and temperature. The model showed that fuel bubble swelling is proportional to the burnup by the power of 1.157 and to the time by the power of 0.157. Comparison of the model prediction with the measured fission gas swelling data under the various burnup and temperature conditions showed that the model predicts the measured data reasonably well.

1. 서 론

UO_2 소결체는 핵분열로 인한 조사환경에서 다양한 구조적 변화를 일으키게 된다. 소결체는 고온 및 중성자 조사에 의해 대략 4 ~ 5MWd/kgU 연소도까지 제조후에 존재하던 작은 기공들이 소

멸되는 고밀화 현상이 발생하고 이후 핵분열 물질의 생성에 의해 팽윤현상이 일어난다. 팽윤은 일반적으로 핵분열물질의 고체상이 축적되어 일으키는 팽윤과 핵분열물질의 기체상이 기포를 형성하여 발생하는 팽윤으로 구분할 수 있다. 낮은 온도에서의 팽윤은 핵분열 생성물중 고체상에 의한 팽윤이 주도하게 되고 연료의 온도가 상승함에 따라 핵분열 기체의 확산속도가 커져서 기포가 생성, 성장하여 미세조직의 변화를 일으켜 기포에 의한 팽윤이 발생한다. 온도가 더욱 상승하면서 결정립 경계에서 기포들의 연결에 의해 생긴 개방된 틈으로 핵분열 기체가 소결체 외부로 방출되고, 기포의 성장과 조직의 변화를 방해하게 됨으로서 핵분열 기체 방출이 증가함에 따라 팽윤은 급속도로 낮아지게 된다. 핵분열 기체에 의해 형성된 기포들은 온도가 상승하면서 기포내의 핵분열 기체의 증가로 기포가 성장하고 결정립의 경계에서 성장된 기포는 상호유착에 의해 연결된 기포로 인해 팽윤이 커지게 된다.

조사된 연료 소결체의 파쇄 표면에서 결정립 표면과 모서리에 큰직경의 기포가 관찰되었고[1], 높은 연소도와 온도에서 결정립 모서리 기포들은 서로 연결된 터널형태를 취하고 있으며, 기포가 결정립 모서리에서 모서리까지 네 모퉁이가 연결되어 있는 것도 SEM 관찰에 의해 확인되었다. 이러한 핵분열 기체 기포에 의한 팽윤은 대략 10% 정도에서 포화된다[2]. I. Zacharie. et. al.[3]의 실험에 의하면 기포 성장은 온도와 시간의 변화에 따라 변화하게 되며 SEM 조사에 의하며 25GWd/tU의 연소한 소결체를 1545℃ 및 1715℃에서 60분 Annealing한 경우 각각 4.1 %, 7.4%의 팽윤이 있었다. 여기서 기포의 성장은 고온에서 1시간 정도의 짧은시간 안에 급격한 상승을 보이는 것을 확인하였다. 보다 정확한 핵연료 팽윤 평가를 위해서는 연료봉내의 정수압력(hydrostatic pressure)과 PCI(pellet-clad interaction)와의 관계가 적용되어야 하나 본 연구에서는 반영되지 않았다. Zimmermann[4]은 억제된(restraint) UO₂와 억제하지 않은(unrestraint) UO₂ sample에 등은 조사를 통하여 부피변화를 측정된 결과 억제된 UO₂ sample에서 온도와 연소도의 의존도가 떨어져 5%정도에서 포화되는 것을 확인하였다. 정수압과 PCI의 관계는 추후 연구를 통해 반영코자 한다. 또한, 핵분열 가스에 의한 정량적인 팽윤량을 계산하기 위해 핵분열기체 방출을 고려하지 않았으며, 온도와 시간 그리고 연소도의 함수식으로 표현할 수 있는 핵분열 기체에 의한 정량적인 팽윤 모델을 제시했다.

2. 기포성장에 따른 기체팽윤 모델

핵분열 기체의 기포성장 모델은 팽윤을 계산하는데 직접적인 영향을 주게되는데 기포 성장을 모사하기 위해 아래의 가정을 하였다.

- 1) 기포에 포함된 기체는 이상기체 법칙을 따른다.
- 2) 기포는 소결체 기지내에 외부의 압력에 영향을 받지 않은 상태에서 기계적평형을 유지한다.
- 3) 기포는 표면 확산 메카니즘에 의해 불규칙하게 이동한다.
- 4) 모든 기포는 일정한 같은 크기로 가정한다.

연료가 연소됨에 따라 생성된 핵분열 기체는 결정립 모서리나 경계면으로 이동하여 기포성장을 일으킨다. 그림 1에서처럼 핵분열 기체는 확산에 의해 결정립 모서리나 경계면으로 이동하여 하나의 단위 기포를 형성한다고 가정하고 기포의 부피를 통해 팽윤을 계산한다. 기포에 의한 핵연료의 팽윤 거동을 설명하기 위해 핵분열기체의 원자밀도로부터 예측되어야 한다. 단위 기포의 반경 R_b 안에 있는 기체원자의 수(m)는 기포 부피와 가체밀도에 비례하게 된다.

$$m = \frac{4\pi R_b^3}{3} \rho_g \text{ ----- } \textcircled{1}$$

여기서, 기체밀도 ρ_g 는 $\frac{1}{\rho_g} = B + \left(\frac{kT}{2\gamma}\right)R_b$ 이다. B는 기체 원자부피이고, k는 Boltzmann 상수, T는 절대온도(K), γ 는 표면장력이다. 기체밀도에 ①식을 대입하면 $m = \left(\frac{4\pi R_b^3}{3}\right) \left[B + \left(\frac{kT}{2\gamma}\right)R_b\right]$ 가 된다. 기포반경 R_b 가 0.1 μm 보다 클 경우 상대적으로 $(kT/2\gamma)R_b$ 값이 남게 되어 단위 기포의 반경 R_b 안에 있는 기체원자의 수는 다음과 같다.[5]

$$m = \frac{4\pi R_b^2}{3} \left(\frac{2\gamma}{kT}\right) \text{ ----- } \textcircled{2}$$

여기서 핵분열 계체에 의한 팽윤 현상을 평가하기 위해서 기포반경 R_b 가 큰 기포를 이용하여 계산한다. 무한 매개체에서 단위 부피당 생성되는 핵분열 기체의 양은 소결체 기지내에 잔류한다고 가정하면 소결체 기지내에 전체 핵분열율에 따른 기체원자는 균형을 유지해야 한다.

$$Y_{xe}\dot{F}t = C + M = mN \text{ ----- } \textcircled{3}$$

여기서 Y_{xe} 는 단위분열당 안정한 Xenon과 Krypton의 생성률, \dot{F} 는 단위 부피시간당 핵분열밀도, (fissions/cm³·sec), t는 조사시간(sec), C는 단위 부피당 기체 원자수(atoms/cm³), M은 기포로 존재하는 단위 부피당 기체 원자수(atoms/cm³), N은 연료의 단위부피당 기포의 총 수이다. 앞의 가정에 따라 기지내에서 C는 무시하고 일정한 크기의 기포내의 총 핵분열 기체 원자는 단위부피당 기포수와 기포속의 기체 원자 수로 표현할 수 있다.

기체에 의한 팽윤은 결국 기포간의 유착과 이동에 의해 성장된 크기에 따라 비례하게 되므로 기포속에서 핵분열기체가 시간과 온도에 따라 증가하여 기포간의 충돌과 유착 및 이동으로 기포의 성장을 예측함으로써 정량적인 팽윤을 계산할 수 있다. Greenwood and Speight 모델[6]에 의해 기포들이 불규칙적으로 이동함에 따라 기포의 유착에 의한 기포성장이 변화한다고 가정하여 2가지의 경우를 고려한 기포반경에 의한 팽윤을 계산하였다.

연소된 연료에 대한 노외에서의 조사후 Annealing 시험의 경우, 위의 가정에 따라 M은 일정량의 기체원자들로 고정되어 있어 $mN = m_0N_0 = M$ 이다. 시간이 영일 때 R_0 의 단위부피당 기포수 N_0 에 있는 기체는 없고, 시간이 증가하면서 N은 감소하고 R_b 는 증가한다. 이때 R_b 는 평균 기포반경이다. ②식과 ③식에서 기포반경에 따른 기포 밀도 N은

$$N = \left(\frac{3MkT}{8\pi r}\right) \frac{1}{R_b^2} \text{ ----- } \textcircled{4}$$

이다. 기포의 불규칙한 이동에 의한 기포의 유착 운동은 기포간의 충돌율[5]로 설명할 수 있으며 반경 R_1 인 기포의 농도 C_1 과 반경 R_2 인 기포의 농도 C_2 가 충돌했을 때 충돌율은 $K_{12}C_1C_2$ 가 되고, 이때 $K_{12} = 4\pi(R_1 + R_2)(D_{b1} + D_{b2})$ 이다. 여기서 모든 기포의 크기가 일정하다고 가정했으므로 $C_1=C_2=N$, $R_1=R_2=R_b$, $D_{b1}=D_{b2}=D_b$ 이다.

여기서 기포의 유착에 의한 기포밀도의 시간에 따른 변화율은 기포의 충돌율과 같다.

$$\frac{dN}{dt} = -4\pi(2R_b)(2D_b)N^2 = -16\pi R_b D_b N^2$$

D_b 는 기포의 확산계수이다. 초기조건인 $N(0) = N_0$ 일 때를 적용하여 적분을 취하여 N 의 해를 구한 다음, 이를 ④식에 대입하여 시간에 따른 기포반경 R_b 에 대한 식으로 정리할 수 있다.

$$R_b = A t^{0.2} \text{EXP}\left(\frac{-Q}{RT}\right)^{0.2} \text{-----} \quad \text{⑤}$$

여기서, A 는 상수이다. 기포반경 R_b 는 위 식과 같이 시간과 온도에 따라 변하게 된다. 조사후 노의 Annealing 시험 후 핵분열기체에 의한 팽윤은 ④식과 ⑤식을 $(\Delta V/V)_g = (4\pi R_b^3/3)N$ 에 대입하여 얻는다.

$$\begin{aligned} \left(\frac{\Delta V}{V}\right)_g &= \frac{4\pi}{3} A t^{0.2} \text{EXP}\left(\frac{-Q}{RT}\right)^{0.2} \left(\frac{3MkT}{8\pi r}\right) \\ &= a t^{0.2} \text{EXP}\left(\frac{-Q}{RT}\right)^{0.2} \text{-----} \quad \text{⑥} \end{aligned}$$

여기서 a 는 상수이다.

노의 운전중인 In-pile 상황의 경우에는 연소도에 영향을 받게 되므로 ⑥식에서 기포안에 퍼져 있는 단위 부피당 gas atom 수, $M(\text{atoms}/\text{cm}^3)$ 은 조사시간에 비례하여 일정한 핵분열이 발생하게 되므로 연료내에서 균형을 유지하기 위해 $Y_{xe}\dot{F}t = C + M = mN$ ($C = 0$)이 된다. 여기서 ②식과 ③식에서 일정한 크기의 기포반경 내에 핵분열 기체가 모두 존재한다는 가정에서 기포밀도 N 은 다음과 같이 정리된다.

$$N = \left(\frac{3Y_{xe}\dot{F}kT}{8\pi r}\right) \frac{t}{R_b^2} \text{-----} \quad \text{⑦}$$

기포의 크기가 일정하다고 가정하고 초기조건 $N(0) = 0$ 를 반영하여 기포밀도 N 을 정리하면 다음과 같이 정리된다.

$$N = \frac{4}{5} b^{2/5} t^{1/5} \text{-----} \quad \text{⑧}$$

여기서 b 는 상수이다.

⑦식과 ⑧에서 In-pile 상황에서 조사시간 t 에 따른 기포반경 R_b 의 값을 결정할 수 있다.

$$R_b = B t^{0.4} \text{EXP}\left(\frac{-Q}{RT}\right)^{0.2} \text{-----} \quad \text{⑨}$$

여기서 B 는 상수이다. ⑨식을 $(\Delta V/V)_g = (4\pi R_b^3/3)N$ 에 대입하면 조사시간에 따른 핵분열 기체에 의한 In-pile 상황에서 팽윤을 다음과 같이 정리할 수 있다.

$$\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_g = \beta t^{1.4} \text{EXP}\left(\frac{-Q}{RT}\right)^{0.2} \text{-----} \quad \text{⑩}$$

여기서 β 는 상수이다.

⑩식의 상수 β 에서 핵분열을 $Y_{xe}\dot{F}t$ 를 연소도의 식으로 환산하여 적용하면 연소도에 따른 팽윤의 변화량을 유도할 수 있다. 단위 부피당 핵분열 밀도 F 는 $\dot{F}t$ 이고 Fractional Burnup %FIMA(%Bu)은 F/N_f^0 이다. 여기서 N_f^0 는 단위부피당 연료의 초기 원자의 수이다. 따라서 ⑩식에 Fractional Burnup Factor를 포함하여 정리하면 다음과 같다.

$$\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_g = C_o \cdot \%Bu^{1.2} t^{0.2} \text{EXP}\left(\frac{-Q}{RT}\right)^{0.2} \text{-----} \quad \text{⑪}$$

따라서 in-pile 조건에서 기체에 의한 팽윤은 상수 C_o 에서 Fractional Burnup, 시간 및 온도의

함수로 표현할 수 있다. ⑥식의 조사후 노의 Annealing 시험의 경우도 일정한 연소도를 거친 연료를 시간에 따라 일정온도로 가열한 상태이므로 같은 형태의 식으로 유도된다. 그러나, 실제 연소한 핵연료를 가열냉각후 SEM 분석에 따르면 annealing 초반(고온에서 60분)에 급격한 팽윤을 확인할 수 있었으며 이후 팽윤이 saturation 될 때까지 완만한 상승곡선을 그린다. 또한 가열 온도에 따라 팽윤의 폭이 큰 차이를 보이고 있어 방사화에너지 Q 값의 결정에 신중할 필요가 있다. 여기서는 Reynolds[7]가 사용한 결정립 표면에서의 기체 원자 확산계수를 사용하였다. 따라서 핵분열 가스의 기포성장애 의한 팽윤을 실제 실험에서 나타난 현상과 비교한 경험식을 제시한다.

$$\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_g = 5.4 \cdot BU^{1.157} \cdot \left[t \cdot \text{EXP}\left(\frac{-59,700}{T}\right) \right]^{0.157} \text{-----} \text{⑫}$$

여기서 시간에 대한 지수승은 핵분열 가스가 방출 되기전 시점인 성장된 기포의 연결조건[9]을 고려한 $\pi/4$ 에 Trial solution에 얻은 $n = 1/5$ 를 곱하여 얻었다. 또한, Fractional Burnup을 일반연소도(MWd/kgU)로 환산(1 %FIMA는 9.5 MWd/kgU임)하여 결과식에 반영하였으며, 기포 표면에서의 확산계수 및 기포의 표면장력에 의존[5]하는 상수 5.4는 Zacharie[7]의 상변태 분석결과를 사용하여 경험적으로 구하였다.

3. 시험결과와의 비교

노내에서 연소된 소결체를 다양한 온도에서 annealing하여 팽윤현상을 관찰한 시험결과와 본 논문에서 유도된 경험식을 비교 검토하였다. 그림 2는 I. Zacharie[3]의 실험결과와 모델식을 비교한 것인데 다양한 온도조건에서 실험결과와 잘 일치하였다. 여기서 사용된 실험자료는 25MWd/kgU를 연소한 4.5% 농축된 UO_2 소결체를 각 온도별로 annealing한 후 측정된 것이며 UO_2 소결체 제조시 결정립의 크기는 $9.3\mu m$ 이다. 그림 3은 36MWd/kgU 연소한 소결체에 대해 $1400^\circ C$ 에서 기포에 의한 팽윤현상[8]을 비교한 것이다. 팽윤이 아직 포화되지 않은 짧은 시간동안에만 측정된 팽윤 실험자료와 비교함으로써 신뢰성이 낮지만, 실제의 팽윤현상은 모델식과 유사한 거동을 보일 것으로 추정된다. 그림 4는 노내에서의 팽윤거동을 연소도의 함수로써 실험결과[4]와 비교한 것이다. 핵분열 기체 방출이 매우 적은 낮은 온도인 1250 K에서의 연소도에 따른 팽윤거동이 모델식과 비교적 잘 일치하는 것을 알 수 있다. 그러나 본 모델식에 핵분열기체 방출을 고려하지 않았기 때문에 온도가 올라감에 따라 실험자료와 많은 차이가 발생하였다. 그림 5는 K. Une[10]의 온도에 따른 팽윤 실험자료와 비교한 것으로, 실험조건은 44 MWd/kgU의 연소조건과 기포내압과 외부압력의 차이(ΔP)가 72 ~ 86 MPa이다. 온도변화에 따른 실험조건에서 핵분열 기체 팽윤이 실험결과와 계산치가 잘 일치한다. 따라서, 유도된 핵연료 기체 팽윤 모델은 기존의 실험자료와 비교한 결과, 비교적 잘 예측하는 것으로 나타났다.

4. 결론 및 향후과제

핵분열 기체는 연료 지지대에 결정립 내부, 모서리 및 경계에 분포하여 연료가 연소함에 따라 다양한 형태의 거동을 보이게 된다. 본 논문에서는 Greenwood & Speight[1] 모델을 근거로 핵분열 기체의 기포에 의한 핵연료 팽윤을 연소도, 시간 및 온도의 함수로 유도하였다. 유도된 경험식은 기존의 실험자료와 비교한 결과 대체적으로 잘 예측하는 것으로 나타났다. 따라서, 개발된 모

텔은 정상 및 과도상태의 핵분열 기체 기포의 생성으로 인한 핵연료 팽윤거동을 예측할 수 있다. 추후 고연소도 핵연료 성능분석에 활용 가능하도록 외부압력과 핵분열 기체 방출의 영향을 추가적으로 고려한 핵연료 팽윤 모델을 개발할 예정이다.

후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었다.

참고문헌

- [1] G.L. Reynolds and G.H. Bannister, J. Mater. Sci. 5, (1970) 84
- [2] J.A. Turnbull, J. of Nucl. Mater., 50 (1974) 62-68
- [3] I. Zacharie, et. al., J. of Nucl. Mater., 255 (1998) 92-104
- [4] H. Zimmermann, J. of Nucl. Mater., 75 (1978) 154-161
- [5] D. Olander, Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements, TID26711-PI,(1976)
- [6] G.W. Greenwood and M.V. Speight, J. of Nucl. Mater., 10 (1963) 140
- [7] G.L. Reynolds, W.B. Beere and P.T. Sawbridge, J. of Nucl. Mater., 41 (1971) 112
- [8] J. Burbach and H. Zimmermann, KfK 3997 (1985)
- [9] T. Kogai, J. of Nucl. Mater., 244 (1997) 134
- [10] S. Kashibe & K.Une, J. of Nucl. Mater., 247 (1997) 140

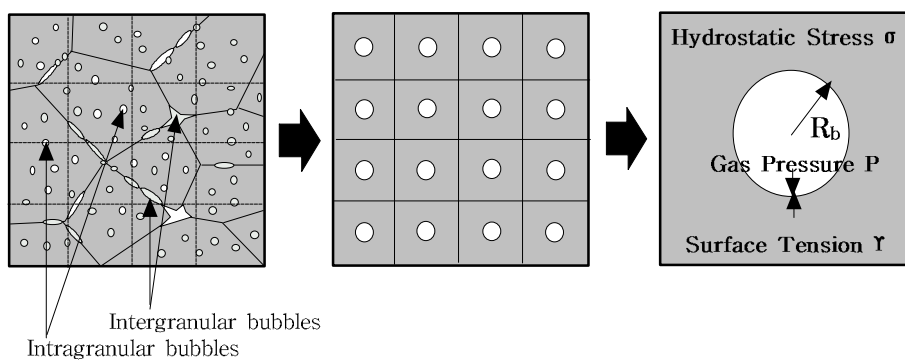


그림 1. 단위 부피에서 기포의 형태 및 가정된 기포성장 과정

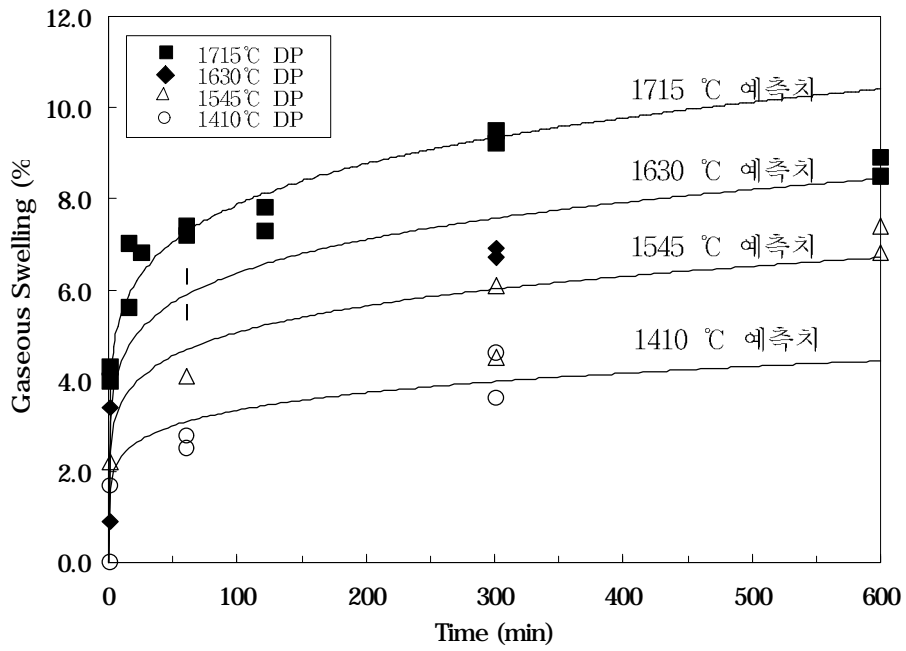


그림 2. 핵연료 팽윤 예측치와 I Zacharie 실험자료[3] 비교

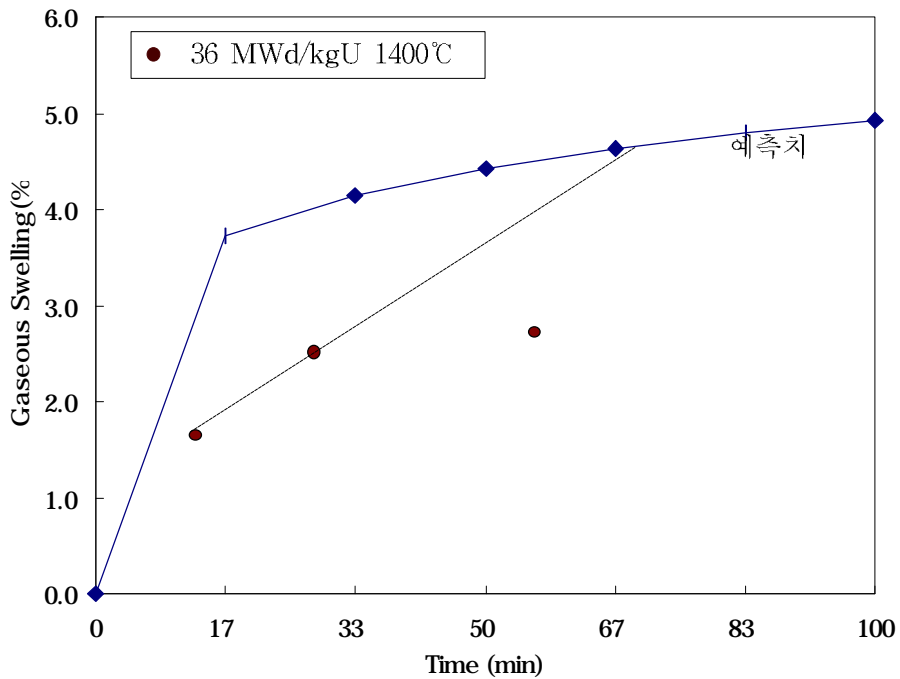


그림 3. 핵연료 팽윤 예측치와 J. Burbach 실험자료[8] 비교

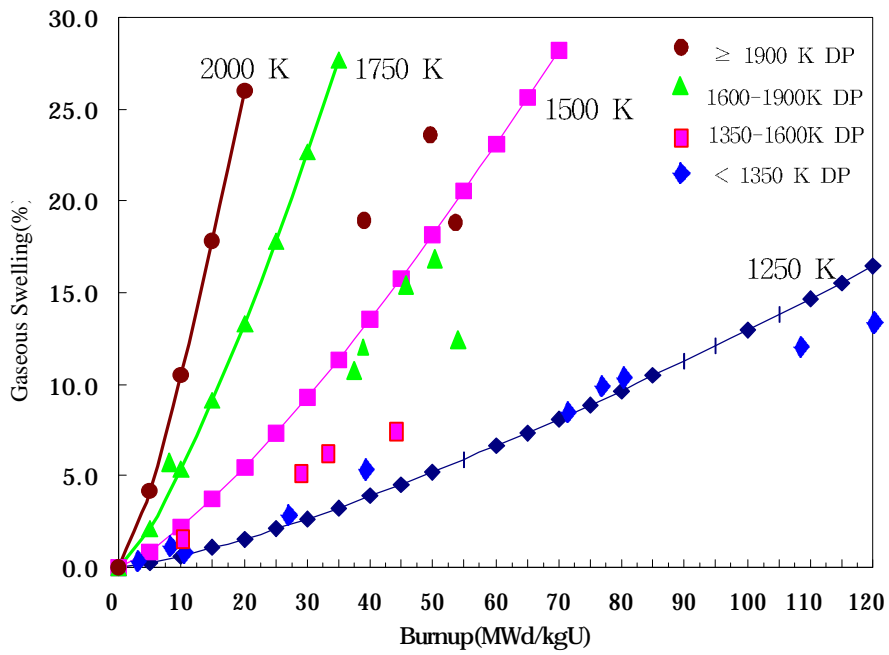


그림 4. 연소도에 따른 Zimmermann 실험자료[4]와 모델 예측치 비교

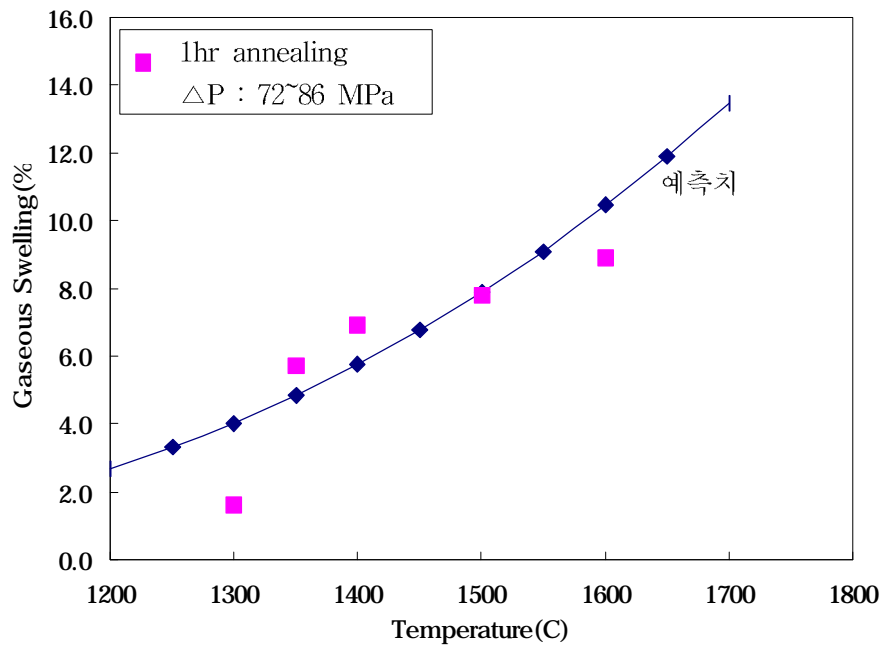


그림 5. 온도변화에 따른 K. Une 실험자료[10]와 모델 예측치 비교