

핵연료내 결정립 외부 공극의 상호연결분률 예측용 정육각형 퍼콜레이션 모델

김한철 · 이종인

한국원자력안전기술원
대전광역시 유성구 구성동 19

조규성

한국과학기술원
대전광역시 유성구 구성동 373-1

요 약

고온의 정상상태에서 조사된 후 재조직(restructuring)과 균열(cracking)이 일어난 핵연료 내에서 결정립 외부 공극의 율 결정할 수 있는 퍼콜레이션(Percolation) 모델을 개발하였다. 핵연료 펠렛은 다수의 작은 정육각형 결정립들로 구성된 큰 정육각형으로 모의한다. 핵연료봉은 형상과 열적 특성이 다른 네 개의 영역으로 구분하고 각 경계 위치를 임계온도로부터 계산한다. 공극의 상호연결분율은, 몬테카를로 방법으로써 사이트(Site)의 채워짐 여부를 점검하고 Hoshen-Kopelman 방법으로써 자유 공간에 연결된 클러스터(Cluster)에 포함된 사이트들의 수를 계산하여 채워진 사이트의 총 개수에 대한 연결 사이트들의 개수의 비로써 구한다. AECL-2230, CBX 핵연료봉 실험의 기체 방출분율 자료에 대하여, FASTGRASS 코드의 상호연결분율 함수를 영역별로 계산한 상호연결분율로 대체하여 계산한 결과와 비교하였다. 균열과 재조직은 핵분열 기체 방출에 상당히 영향을 미치는 것으로 나타났다. 이 모델의 주요 장점은 결정립계에서의 상호연결현상을 단순 상호연결분율보다 좀더 사실적으로 모의하며 결정립의 성장과 균열을 고려할 수 있다는 점이다.

1. 서론

원자로 핵연료로부터의 핵분열 기체 방출 현상은 핵연료봉의 건전성과 발전소의 안전성에 직결된다. UO_2 핵연료 펠렛은 많은 결정립들로 구성된 다결정체이기 때문에 핵분열 반응으로 생성된 기체 원자들은 결정립계로 확산된 후 기포를 형성하거나 결정립 기지(matrix)로 채용해될 수 있다. 기체 원자가 더욱 축적되면 결정립계 기포는 결정립 표면이나 가장자리에서 성장하여 인접 기포들과 결합하게 된다. 마침내 기포들이 함께 연결되고 핵분열 기체는 연결 통로를 통해 자유 공간으로 방출된다.

Booth가 제시한 최초의 분석 모델은 결정립계를 완전 침원(Sink)으로 가정하여 구형 핵연료에서의 핵분열 기체 원자의 확산을 모의하였다. [1] 확산 모델은 매체의 능동적 역할을 무시한 점 때문에 결정립계 기포로부터의 핵분열 기체의 방출량을 예측하는 데 어려움을 드러냈다. 핵분열 기체의 이동에 관한 확산 이론은 침전(Precipitation)과 채용해(Resolution)를 고려하는 등 [2] 많은 진보가 있었지만, 대부분의 기계적 모델(Mechanistic Model)에서는 결정립계에서의 기체 방출을 단순히 결정립 단위 면적당의 기체 입자수가 포화 밀도에 도달할 때 일어나는 것으로 가정하고 있다. [3]

Broadbent와 Hammersley가 무질서한 매체와 관련된 문제를 다루기 위해 퍼콜레이션 이론을

최초로 제시한 이래 [4] 이 이론을 적용하여 핵분열 기체의 방출 분율을 더 정확하게 예측하기 위한 여러 시도가 있었다. Ritzman 등은 3차원 공간에 기포가 임의로 분포되어 있을 때 상호연결된 기포의 분율을 전체 기공률의 함수로서 기술하였다. [5] Ronchi는 단순 입방체 회로망에 대해 Site당 Bond의 평균수가 Bond Percolation 모델에 의해 결정된 문턱값보다 더 클 확률을 공극의 상호연결의 정도라고 정의하였다. [6] White와 Tucker는 퍼콜레이션 이론을 써서 다결정립 집합체 (Poly-Granular Aggregates) 내에서 결정립 가장자리 터널 회로망의 간헐적 개방을 통한 핵분열 기체 방출시 유효확산계수를 계산하였다. Massih는 기포의 기하학적 분포와 기포연결분율 간의 관계를 도출하고자 하였다. [7] 구양현 등은 운전조건에 따른 핵연료 펠렛에서의 균열 양상을 모의하여 다중영역에서의 기포연결분율을 결정하는 방법을 제시하였다. [8] FASTGRASS 코드는 결정립 표면이 기포들로 덮이는 면적과 결정립 가장자리 기포의 팽윤에 대해 정규분포를 가정하여 기포연결분율을 구함으로써 핵분열 기체의 방출량을 계산하였다. [9]

제조직은 고속로와 같이 핵연료 중심부 온도가 매우 높을 때 운전 개시 수일 후에 결정립의 성장과 수반하여 일어날 수 있다. [10] 또한 균열은 출력 변화시 핵연료 펠렛 내부의 열응력에 의해 일어날 수 있다. 그러므로 고출력에서 출력변화를 경험한 핵연료봉에서는 운전 후기에 균열 및 제조직이 일어났다고 볼 수 있으며, 이 효과는 결정립계를 통한 핵분열 기체를 예측하는데 고려되어야 한다.

본 연구에서는 균열과 제조직 현상을 고려한 Site Percolation 모델을 사용하여 결정립계에서의 핵분열 기체 기포의 연결분율을 계산하는 알고리즘을 개발하고, 원통형 핵연료봉에서의 방출분율 예측에 적용하기 위해 2차원의 정육각형 모델을 제시하였다. 이 연구의 목적은 종합적인 핵분열 기체 방출에 관한 계산 모델을 제시하는 것이 아니라 연결된 기포들을 통해 기체가 방출되는 부분을 더 실제적으로 예측할 수 있는 방법을 제시하고자 하였다. 본 논문에서는 기본 모델링, 알고리즘의 검증, 실험 자료에 근거한 계산 결과 등을 기술하였다. [11]

2. 모델 개요

핵연료 펠렛에서 핵분열 기체 기포들의 결정립계간 이동은 2차원적으로 고려할 수 있다. 조사된 펠렛을 찍은 SEM 사진에 나타난 UO_2 핵연료의 결정립 형상에 유사하도록 이를 정육각형으로 모의하고 핵연료봉을 큰 정육각형으로 보았다. 정육각형과 본래 원형의 단면적이 같게 하기 위해 이 큰 정육각형의 대각선 길이를 원통형 핵연료의 지름의 1.1배가 되게 하였다. 그림 1에 나타낸 바와 같이 이 모델에서는 정육각형 결정립의 모서리들을 핵분열 기체가 결정립계에서 기포를 형성할 수 있는 Site로 가정하였다. 만약 두개의 인접한 Site들이 포화된 기포로써 채워지면 두 Site 간에 채널이 자동적으로 형성되어 두 기포의 기체 원자가 이동할 수 있는 것으로 보았다. 이 가정은 Site Percolation 유형을 따른다.

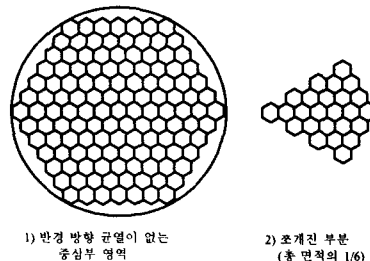


그림 1 UO_2 핵연료 펠렛의 정육각형 격자 모델

고온 조건에서 결정립계 핵분열 기체의 방출을 좀더 현실적으로 모의하기 위하여 핵연료의 재조직 (Restructuring) 효과와 균열을 모델에 포함하였다. 고출력 상태에서 핵연료봉의 단면적은 중심부 공동 밖으로 3개의 동심원으로 구분할 수 있으며 서로 다른 구조적 특성과 밀도를 가지고

있다. [12] 제조시의 재료 특성을 유지하고 있는 최외각 영역은 온도 구배 정도에 따라 두개의 영역으로 세분하였다. 표1은 제조직된 핵연료봉의 4개 영역에 대한 온도 범위를 보이고 있다. 결정해야 할 미지수는 중심온도와 영역간 경계선의 반경 방향 위치이며, 이들은 제조직 과정의 문턱 온도, 각 영역의 밀도, 선형 출력으로부터 영역별 연립 열전도식을 False Position 등 수치해석적 방법을 이용하여 구할 수 있다. 온도 종속적인 열전도도 $k(T)$ 는 MATPRO 상관식을 적용하였다. [13]

표 1 제조직된 핵연료봉의 4개 영역의 온도 범위

구분	온도 영역
Columnar-grain 영역	$T \geq 1900 \text{ } ^\circ\text{C}$
Equiaxed-grain 영역	$1600^\circ\text{C} \leq T < 1900 \text{ } ^\circ\text{C}$
As-fabricated 고온 영역	$1300^\circ\text{C} \leq T < 1600 \text{ } ^\circ\text{C}$
As-fabricated 저온 영역	$T < 1600 \text{ } ^\circ\text{C}$

본 모델에서는 정육각형 결정립의 크기가 각 영역 내에서 균일하다고 가정하며 운전 후 크기는 FASTGRASS에 의해 각 영역의 평균 온도와 연소도 (시간)로부터 계산한다. 각 영역의 결정립 크기로부터 각 영역의 정육각형 링의 수를 계산할 수 있다.

두 개의 영역 경계에 원주 방향의 균열 한 개가 존재하고 각 영역 내부에는 수 개의 반경 방향 균열이 정상운전 기간 중에 있는 것으로 가정하였다. 그림 1은 반경 방향 균열이 없는 중심부 영역과 균열에 의해 조개진 부분을 보이고 있다. 반경 방향 균열의 수는 각 영역별로 서로 다르게 적용할 수 있다.

공극연결분율은 자유 공간에 연결되어 있는 Site들의 수와 채워진 Site들의 전체 수의 비로 정의된다. 결정립 외부 공극의 Site에 기체 기포가 채워지면 전체 핵연료 펠렛의 팽윤이 일어난다. 정상상태에서 충만히 채워진 기포 Site가 각 영역에 임의로 분포되어 있고 충만 되지 않은 기포는 핵연료봉의 체적 팽윤에 기여하지 않으며 최대 체적 팽윤 시에는 모든 기포 Site가 충만한 기포로 채워져 있는 것으로 가정한다. 따라서 어떤 기포 Site가 충만한 기포로 채워질 확률 P 는 현재의 체적 팽윤과 최대 체적 팽윤의 비와 같게 된다. 실험적으로 측정된 최대 체적 팽윤율은 대개 5 ~ 8.7% 정도이다. [14-16] 본 연구에서는 최대값을 8.7%로 결정하였고 현재의 체적 팽윤은 FASTGRASS로부터 얻는다.

각 영역에서의 공극연결분율을 벌집모양 격자에서 Site가 채워질 확률 P 의 함수로서 계산하기 위한 알고리즘을 개발하였다. 이 알고리즘은 Monte Carlo 방법과 Hoshen과 Kopelman [17]이 제안한 번호부여 방법에 기초하였다. 제안된 알고리즘에는 다음과 같은 과정이 포함되어 있다.

- (1) 특정 Site가 채워지는지 여부 점검
- (2) 그 Site가 채워진 인접 Site에 연결되었는지 여부 점검
- (3) 그 Cluster가 자유 공간에 연결되었는지 여부 점검
- (4) 자유 표면에 연결된 Cluster내 Site들의 수를 합산하여 공극연결분율 결정

공극연결분율 대 P 자료를 핵분열 기체의 방출 분율 예측에 적용하기 위해 종합적인 기체 방출 과정을 취급할 수 있는 FASTGRASS 코드를 이용하되 FASTGRASS의 공극연결분율 상관식을 본 모델로 대체한다. 방출분율은 현재까지의 조사기간중 방출된 핵분열 기체 총량과 생성된 핵분열 기체 총량의 비로 정의한다. 핵연료봉 전체로부터의 평균 방출분율은 영역별 방출분율로부터 면적비를 가중치로 하여 구한다.

3. 결과 및 논의

3.1 실험자료와의 비교 : AECL-2230, CBX 실험

공극연결분율을 계산하는 알고리즘의 타당성을 실험자료에 대해 비교 계산을 통해 확인하기 위해 AECL-2230, CBX 실험을 선택하였다. [18] 이 연료봉은 비교적 일정한 출력에서 조사되어 정상상태에 대한 좋은 실험자료로서 사용되어 왔다. 표 2는 이 실험의 핵연료봉과 운전조건에 대한

개요를 나타내고 있다. 추가적으로 적용한 가정으로서 핵연료봉은 2주기의 조사 이력을 가지고 있으나 1개의 정상상태 운전으로 단순화하였고, 모든 4개 영역에 대해 반경 방향 균열의 수를 기본적으로 12개로 가정하되 균열의 수에 대한 타당성을 파악하기 위해 중심부 3개 영역에 대해서는 균열이 없을 때부터 24개가 있는 경우까지 고려하였다.

표 2 AECL-2230, CBX Test의 핵연료, 피복재 및 운전 특성

Characteristic	CBX Element
Fuel	
Enrichment (wt% U-235 in U)	2.4
Density (Mg/m ³)	10.44
Initial Grain Size ((m)	5.0
Pellet Diameter (mm)	16.32
Initial Porosity (%)	4.74
He atom fraction	0.018
Clad	
Outside Diameter (mm)	17.8
Thickness (mm)	0.76
Operating Conditions	
Coolant Pressure (MPa)	8.14
Inlet Temperature (oC)	249
Linear Power (kW/m)	56.1
Irradiation Time (10 ⁶ sec)	7.30
Burnup (MWD/MTU)	2710
Fuel Center Line Temperature (oC)	2020
Fuel Surface Temperature (oC)	525

계산된 온도 분포와 4개 영역의 반경방향 위치는 그림 2에 나타나 있다. 중심 온도는 보고된 실험치와 100°C 이내, FRAP 계산치와는 10°C 이내로 일치하였다. 이 실험조건에서 Columnar grain 영역에서는 결정립이 제조시보다 80배 정도 성장함을 나타냈다. 4개 영역에 대해 계산된 공극연결분율 대 P를 그림 3에 나타냈다. 최외각 영역에서는 전형적인 퍼콜레이션 곡선이 나타나는 반면, 중심영역에서는 P가 작을 때 Non-Zero Plateau를 나타냈다. Plateau의 높이는 영역의 Site 개수가 감소할수록 상승한다. 퍼콜레이션 문턱값 0.69는 광역의 상호연결이 일어나는 개시점으로 간주할 수 있는 5.6% 팽윤율에 해당된다고 볼 수 있다. 6% 팽윤에서는 결정립 가장자리 공극의 90% 이상이 상호연결되며, 이는 White와 Tucker의 관찰 결과와 일치한다.

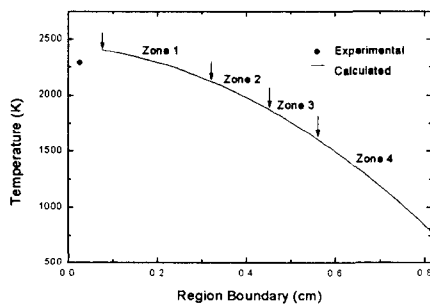


그림 2 AECL-2230, CBX 핵연료봉의 온도 분포 계산 결과

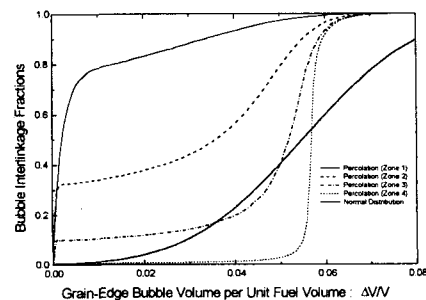


그림 3 AECL-2230, CBX 핵연료봉에 대한 공극연결분율 계산 결과

공극연결분율을 핵연료봉에서 직접 측정할 수 없으므로 계산된 공극연결분율 대 P 자료를 적용하여 핵분열 기체의 방출량을 계산하였다. 표3은 핵분열 기체 계산치와 실험치를 상호비교한 것으로서, 단일 영역 분석결과는 상당히 작게 예측하며 균열과 재조직을 고려한 4개 영역 분석결과는 핵분열 기체 방출량이 증가하였지만 여전히 실험치보다 작게 예측함을 나타내고 있다. 이는 반경 방향 균열과 운전이력에 대한 고려 미흡 등이 그 이유로 판단된다.

표 3 AECL-2230 시험연료봉의 기체방출분율 측정치와 계산결과와의 비교

Experiment	FASTGRASS		Percolation			
	Single Node	4 - Nodes	Single Node	4-Nodes		
				No Crack	12 Cracks	24 Cracks
0.188	0.012	0.120	7.55×10^{-4}	0.125	0.149	0.161

3.2 논의

그림 3에서 FASTGRASS 고유 모델에 의한 공극연결분율 계산값을 본 모델에 의한 계산 결과와 비교하기 위해 표시하였다. FASTGRASS는 공극연결분율을 결정립 가장자리 팽윤율이 평균치 B_{vedge} 를 중심으로 정규분포할 때 팽윤율 문턱값 (5.5%)이 초과될 확률로서 기술하였다. FASTGRASS는 단일 영역의 공극연결분율을 제시하는 반면, 본 연구에서는 팽윤율과 각 영역의 기하학적 변수, 즉 결정립의 격자 형태, 단면적, 결정립 성장 및 균열 개수 등을 고려하였다. 이 영역별 공극연결분율은 최외각 영역 외에는 대부분의 P에 대해 FASTGRASS의 단일영역 공극연결분율보다 높은 값을 나타냈다.

반경 방향 균열의 수가 핵분열 기체 방출에 미치는 영향을 평가해 본 결과, 그림 4와 같이 균열이 2개일 때 기체방출분율이 급격하게 증가하였다가 균열 수가 증가함에 따라 약 0.0013/ 추가 균열 수의 비율로 증가하였다.

선형출력 q' 의 변화에 따른 기체방출분율의 변화에 관한 AECL의 실험 [19]에 대하여 계산치와 비교하였다. 상세 실험자료가 미비하여 각 선형출력의 경우에 대해 연소도가 AECL-2230 실험시와 동일하다고 가정하였다. 또한 반경 방향 균열의 수가 선형출력의 상승에 따라 증가하는 것으로 가정하였다. 그림 5에 나타나 있는 바와 같이 일반적으로 퍼콜레이션 모델은 FASTGRASS 고유 모델보다 방출분율 실험자료에 더 잘 일치하였으나 고출력에서는 여전히 약간 과소 평가하였다.

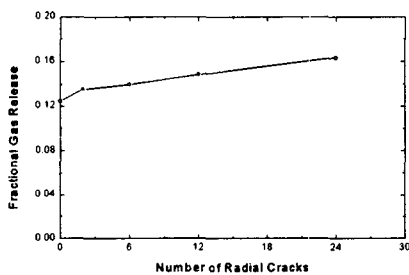


그림 4 AECL-2230, CBX 실험시 균열이 기체 방출분율에 미친 영향

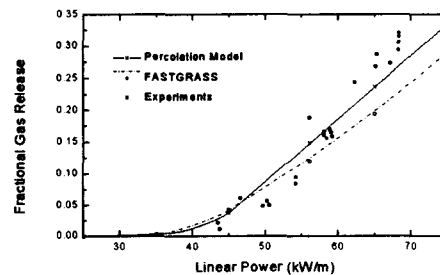


그림 5 선형 열출력 밀도의 변화에 대한 기체 방출분율 계산치의 변화 (MacEwan et al. 1971)

4. 결론

고온의 정상상태에서 조사된 핵연료의 재조직과 균열을 고려하여 결정립 가장자리 기포들의 상호 연결을 예측할 수 있는 2차원 정육각형 퍼콜레이션 모델을 개발하였다. 제시한 모델은 결정립 외부에서의 핵분열 기체 방출을 취급하는 면에서 다음과 같은 장점이 있다. 첫째, UO_2 결정립의 형상과 유사한 정육각형 격자 구조를 사용함으로써 결정립의 성장 등을 좀더 현실적으로 고려한다. 둘째, 퍼콜레이션 과정을 통해 공극의 상호연결 정도를 직접 정량화 함으로써 FASTGRASS 코드의 공극연결분율에 대한 통계적 접근방법의 불확실성을 줄일 수 있다. 셋째, 핵연료봉의 반경 방향에 따른 형상의 변화를 고려하여 영역별 공극연결분율을 결정할 수 있다. 본 공극연결분율 모델을 FASTGRASS 코드에 삽입하여 AECL-2230, CBX 실험에 대해 핵분열 기체 방출분율을 계산한 결과 실험치를 타당하게 예측할 수 있는 것으로 나타났다. 또한 선 출력 밀도의 변화에 따른 핵분열 기체 방출분율 계산치가 FASTGRASS 고유 모델로 계산한 결과보다 실험치에 더 근접함을 보였다.

참고문헌

1. A. H. Booth, *A Method of Calculating Fission Gas Diffusion from UO_2 Fuel and Its Application to the X-2-f Loop Test*. CRDC-721 (1957).
2. M. V. Speight, *Nucl. Sci. and Eng.* **37**, pp.180-185 (1969).
3. K. Forsberg and A. R. Massih, *J. Nucl. Mater.* **135**, pp.140-148 (1985).
4. S. R. Broadbent and J. M. Hammersley, *Proc. Cambridge Philos. Soc.* **53**, pp.629-645 (1957)
5. R. L. Ritzman et al., *Nucl. Appl. Technol.*, **9**, pp.167-187 (1970).
6. R. J. White and M. O. Tucker, *J. Nucl. Mater.* **118**, pp.1-38 (1983).
7. A. R. Massih, *J. Nucl. Mater.* **119**, pp.116-118 (1983).
8. Y. H. Koo et al., *J. Nucl. Mater.* **209**, pp.62-78 (1994).
9. J. Rest and S. A. Zawadzki, NUREG/CR-5840, ANL-92/3 (1992).
10. N. E. Todreas and M. S. Kazimi, *Nuclear Systems I : Thermal Hydraulic Fundamentals*. Hemisphere Publishing Corp., New York, pp.320-331 (1989).
11. H. C. Kim and G. Cho, *Annals of Nuclear Energy*, (to be published)
12. D. R. Olander, *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements*. TID-26711-P1, Technical Information Center, U.S. DOE, chaps. 10,13,15-16 (1976).
13. D. L. Haggman and G. A. Reymann, Idaho National Engineering Laboratory report TREE-1280 (NUREG/CR-0497), Appendix A.2, A.10 (1979).
14. W. Beere and G. L. Reynolds, *J. Nucl. Mater.* **47**, pp.51-57(1973).
15. Turnbull, *J. Nucl. Mater.* **50**, p.62 (1974).
16. C. T. Walker and M. Mogensen, *J. Nucl. Mater.* **149**, pp.121-131 (1987).
17. J. Hoshen and R. Kopelman, *Physics. Rev. B*, **14**, p.3428 (1976).
18. M.J.F. Notley and J. R. MacEwan, *The Effect of UO_2 Density on Fission Product Gas Release and Sheath Expansion*, AECL-2230 (1965).
19. J. R. MacEwan et al., *Proceedings of the Fourth International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy* **10**, p.245 (1971).