

UO<sub>2</sub> 핵연료 림 영역의 미세구조 모사

Simulation of Microstructure of Rim Region in UO<sub>2</sub> Fuel

오제용, 구양현, 이병호, 천진식, 손동성

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

고연소 핵연료 펠렛의 외곽 부위에서 관찰되는 림(rim) 영역은 많은 수의 기포들과 미세한 크기의 재결정화된 결정립들로 이루어진 특징적인 미세구조를 갖고 있다. 이 미세구조를 정확히 모델링할 수 있다면 좀 더 정확한 림 영역에서 기포들의 거동을 모사할 수 있을 것이다. 본 논문에서는 림 영역의 미세구조를 적절한 가정들을 이용하여 컴퓨터 모델로 모사하고 이를 실제 관찰된 미세구조와 비교하였다. 이를 통하여 가정들의 타당성을 정성적으로 검증하였다.

Abstract

The rim region in the periphery of high burnup UO<sub>2</sub> pellet has a large number of pores and very small recrystallized grains. If the microstructure of the rim region is modeled more refinedly, it is possible to simulate the behavior of pores in rim region more accurately. In this paper, the microstructure of rim region was simulated through proper assumptions, and it was compared with the observed microstructure of the rim region. The validity of assumptions used in the simulation was verified qualitatively through this comparison.

1. 서론

고연소 핵연료 펠렛의 외곽 부위에서 관찰되는 림(rim) 영역은 많은 수의 기포들과 미세한 크기의 재결정화된 결정립으로 이루어진 특징적인 미세구조를 갖고 있다.

기포들이 서로 연결되어 핵연료 펠렛 표면까지 통로를 형성할 경우, 이 통로를 통하여 핵분열 기체생성물이 방출되어 핵연료의 건전성에 영향을 미칠 가능성이 있다. 따라서 림 영역의 미세구조를 정확히 알고 이를 모델에 반영하는 것은 중요한 일이다. 림의 형성 기구와 발달 기구에 대한 모델들[1,2]이 제안되고 있으나 현재로는 림 영역의 미세구조에 대한 수학적모델보다는 미세구조를 실제로 관찰하여 얻어진 자료가 주로 사용되고 있다. 컴퓨터 모델링을 이용하여 림 영역에서 관찰되는 기포들이 핵연료 펠렛 표면까지 통로를 형성할 가능성에 대한 연구가 percolation 모델을 사용하여 수행되었으나 당시 기포가 형성될 가능성에 대한 가정은 림 영역의 특성을 잘 반영하지 못하였다 [3]. 림 영역에서 기포가 형성될 때 기포 주위의 결정립들의 핵분열 기체생성물이 기포의 형성에 기여를 하게 된다. 따라서 기 형성된 기포의 주위에 새로운 기포가 형성될 경우 기포 주변의 재결정화된 미세한 결정립들은 기포 형성에 방해가 될 것이다. 이 효과를 고려하기 위해서는 재결정화된 결정립이 기포 형성에 어느 정도 영향을 미치는지에 대한 정량적인 분석이 필요하나 아직 관련 연구가 진행된 것이 거의 없다. 따라서 본 논문에는 재결정화된 결정립이 기포 형성에 미치는 영향을 적절히 가정하여 미세구조를 모사한 후에 실제 미세구조를 찍은 사진과 비교하여 가정의 타당성을 검증하였다.

## 2. 모델

### 2.1 림 영역

림 영역을 모델링하기 위해서는 상당한 양의 계산이 필요하기 때문에 계산 양을 줄이기 위해서 그림 1과 같이 림 영역을 모델링하였다. 전체적인 림 영역은 정육면체로 모델링되었으며 이 정육면체는 다시 작은 정육면체들(400×400×400)로 구성되어 있다. 작은 정육면체 한변의 길이는 0.25 $\mu\text{m}$ 이다.

### 2.2 기포

림 영역에서 관찰되는 기포의 크기는 주로 1 ~ 1.5 $\mu\text{m}$ 이다 [4]. 따라서 림 영역에서의 한 개의 기포는 5×5×5의 작은 정육면체들(한변의 길이 1.25 $\mu\text{m}$ )로 구성되어 있다고 가정하였다. 림 영역에 기포를 배치할 때는 몬테카를로 방법을 사용하여 배치하였다. 이 때 림 영역의 기공도로부터 작은 정육면체 한 개당 기포가 존재할 확률을 다음 식(1)과 같이 구할 수 있다.

$$P_{pore} = \frac{P_{rim} V_{cube}}{V_{pore}} \quad (1)$$

$P_{pore}$  = 작은 정육면체 한 개당 기포가 존재할 확률,  $P_{rim}$  = 림 영역의 기공도,  $V_{cube}$  = 작은 정육면체의 부피,  $V_{pore}$  = 기포의 부피.

식 (1)에 의하여 계산된  $P_{pore}$ 는 기존의 기포가 새로 생성되는 기포에 아무런 영향

을 미치지 못하는 완전히 랜덤한 경우의 확률이다. 그러나 기포 주위에 존재하는 재결정화된 결정립들은 새로운 기포가 기존의 기포 근처에 생성되는 것을 방해할 것이다. 이 효과가 정량적으로 측정된 적이 없기 때문에 모델링을 하기 위한 가정들은 물리적 의미를 고려하지만 정확한 근거는 없이 다소 임의적으로 될 수 밖에 없다. 여기에 두가지 극단적인 가정이 있을 수 있다. 한가지 생각해 볼 수 있는 가정은 기 생성된 기포가 새로운 기포 생성에 아무런 영향을 미치지 못하다는 것으로, 기포 생성 기구를 고려한다면 이 가정을 사용할 경우 표면까지 열린 통로를 형성할 가능성이 실제보다 높아지게 될 것이다. 다른 가정으로는 기 생성된 기포 주변의 재결정화된 결정립들은 핵분열 기체생성물을 모두 소모하여 절대로 새로운 기포가 근처에 생길 수 없다는 것이다. 이 가정이 사용될 경우 기포 연결에 의한 표면까지 열린 통로 형성이 거의 불가능해진다. 그러나 기포 주위의 재결정된 결정립 내부에서 많은 양의 기체가 관찰된다는 보고[5]도 있으므로 이 가정도 너무 극단적이다. 실제 상황에 부합하는 가정은 아마 위의 두 극단적인 가정 사이에 존재할 것이다.

본 논문에서는 다음과 같은 가정을 사용하였다. 기포가 생성될 때 생성된 기포와 동일한 부피의 기지 조직이 생성에 관여되며, 생성에 관여된 기지조직은 내부의 핵분열 기체생성물을 소모하므로 다음번에 기포가 생성될 확률이 낮아지게 되는 것으로 가정하였다. 어느 정도로 확률이 줄어드는지에 대한 것은 아직 타당한 자료가 없는 관계로 임의로 50% 감소하는 것으로 가정하였다.

위의 가정을 실제 컴퓨터 모델에 적용하기 위하여 다음과 같은 계산을 하였다.

$$x^3 - 5^3 = 5^3 \quad (2)$$

$$\therefore x \approx 7$$

$x$  값이 정수가 되어야 하기 때문에 올림을 하여 7이 되었다.  $x=7$ 의 의미는 기포 바로 주위에 있는 한겹의 작은 정육면체들로 구성된 기지조직만이 기포 형성에 영향을 받는다는 것이다. 작은 정육면체의 한변 길이는  $0.25\mu\text{m}$ 로 림 영역에서 관찰되는 재결정화된 미세한 결정립의 크기가 유사하다. 기포가 생성될 확률은 다음 식(3)에서와 같다.

$$P_{m, pore} = f \times P_{pore} \quad (3)$$

$f = 50\%$ 이며 여러 개의 기포가 생길 경우 이 값은 누적된다.

### 3. 결과 및 토의

그림 2에 14%의 기공도를 갖는 림 영역의 모사된 미세구조와 실제 미세구조를 비교하였다. 미세구조 사진은 66.6 Gwd/tU 평균연소를 갖고 14%의 기공도를 갖는 핵연료의 사진이다 [4]. 모사된 미세구조와 실제 관찰된 미세구조가 유사한 양상을 보였으나 실제 미세구조에서 관찰되는 기포 분포의 모사가 다소 미흡하다.

그림 3에서는 22%의 기공도를 갖는 림 영역의 모사된 미세구조와 실제 미세구조를 비교하였다. 미세구조 사진은 90~100Gwd/tU 평균연소를 갖고 20~24%의 기공도를 갖는 핵연료의 사진이다 [5]. 역시 모사된 미세구조와 실제 관찰된 미세구조가 유사한 양상을 보였으나 실제 미세구조에서 관찰되는 기포 분포의 모사가 다소 미흡하였다. 핵연료 표면 근처에 관찰되는 커다란 기포들을 모사하지 못하였으며, 핵연료 중심쪽으로 갈 경우 모사된 미세구조의 기포들보다 실제 미세구조의 기포들이 다소 분산되어 있는 경향을 보였다. 이유는 미세구조를 모사할 때 기포의 분포를 사용하지 않고 평균 기포 크기를 사용하였고, 반경방향의 연소도 변화를 고려하지 않았기 때문으로 생각된다.

기포의 분포와 생성기구, 연소도 변화를 고려하면 보다 유사한 모사 미세구조를 얻을 수 있을 것으로 생각된다. 한편 식 (3)에서 사용된  $f = 50%$  가정을 사용하여 큰 무리없이 림 영역의 미세구조를 모사할 수 있었으나 기포 분포를 고려한 모사를 할 경우  $f$  값을 일정하게 고정하기 보다는 작은 기포 주위는  $f$  를 높게 하고 큰 기포 주위는  $f$  를 낮게 하는 등 주위 환경에 따라 가변적으로 하는 것이 더 현실적일 것이다. 이런 점들을 고려한 더 세련된 컴퓨터 모사 모델에 관한 연구가 현재 진행중이다.

본 논문에서 모사된 두 미세구조의 경우 전체 기포들 중에서 표면에 연결된 기포의 수는 모두 2%미만으로 계산되어 핵분열 기체방출에 거의 기여를 하지 못한 것으로 판단된다.

#### 4. 결론

고연소 핵연료 펠렛의 외곽 부위에서 관찰되는 림(rim) 영역의 미세구조를 컴퓨터를 사용하여 모사하였다. 기공도와 기 존재하는 기포가 새로운 기포 생성에 미치는 영향에 대한 적절한 가정을 사용하여 모사한 미세구조와 실제 관찰되는 미세구조를 비교한 결과 유사한 경향을 얻을 수 있다.

### 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 중장기 원자력 연구개발 사업의 일환으로 수행되었음.

#### 참고문헌

- [1] K. Nogita and K. Une, Nucl. Instrum. Meth., B91 (1994) 301.
- [2] HJ. Matzke and J. Spino, J. Nucl. Mater., 248 (1997) 170.
- [3] Y.H. Koo, J.Y. Oh, B.H. Lee, D.S. Sohn, J. Nucl. Mater., 321 (2003) 249.

[4] J. Spino, K. Vennix, M. Coquerelle, J. Nucl. Mater., 231 (1996) 179.

[5] J. Spino, D. Papaioannou, D. Baron, Proceedings of the International Seminar on Fission Gas Behavior in Water Reactor Fuels, Cadarache, France, (2000) September 26-29

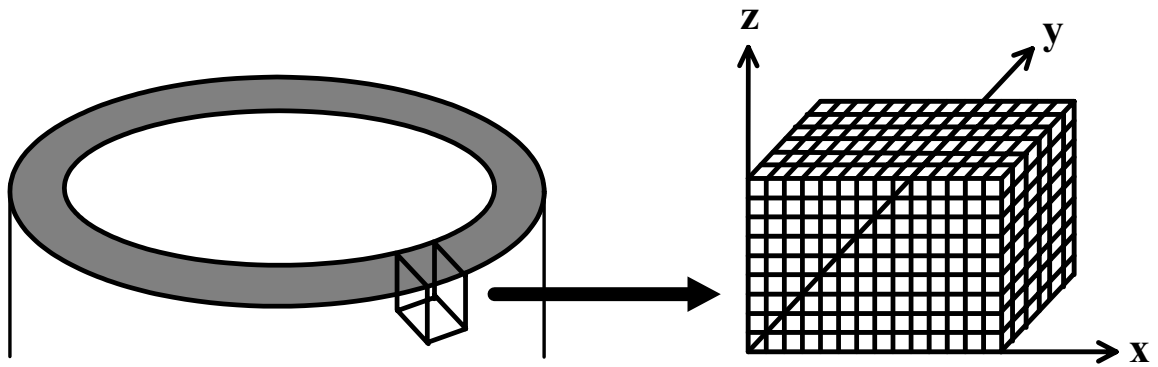
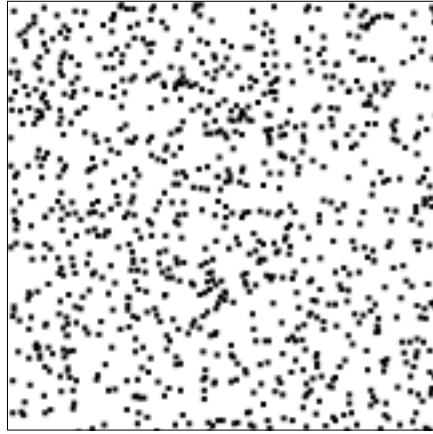
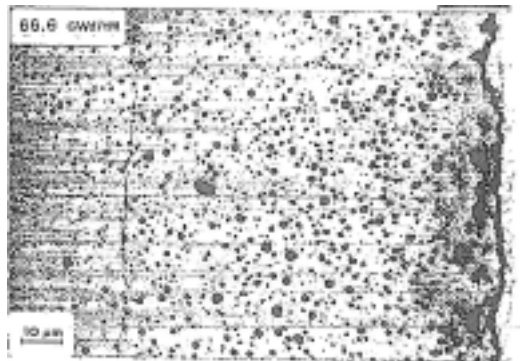


그림 1. 림 영역의 모델

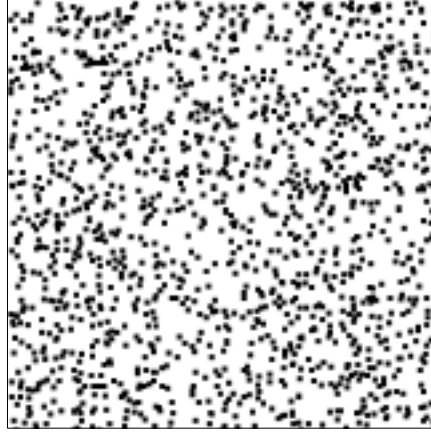


(a) 14% 기공도를 모사한 미세구조

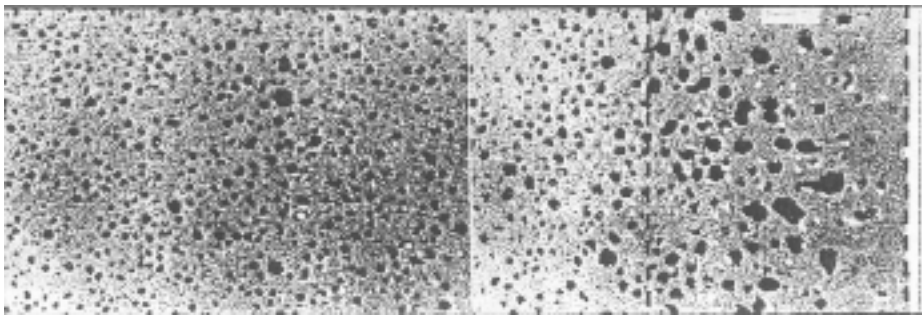


(b) 림 영역 사진 □

그림 2. 14% 기공도를 갖는 미세구조 비교



(a) 22% 기공도를 모사한 미세구조



(b) 립 영역 사진(기공도:20~24%) □

그림 3. 22% 기공도를 갖는 미세구조 비교