

가압경수로 핵연료의 조사후시험-Swelling 거동
(Post-Irradiation Examination of PWR Nuclear Fuel-Swelling Behavior)

민덕기, 엄성호, 이은표, 권형문, 서항석, 황용화, 김길수, 김은가, 전용범
한국원자력연구소
대전시 유성구 덕진동 150

요 약

가압경수로 핵연료의 부피변화 특성을 알아보기 위하여 국내 가압경수로 핵연료봉 17개에서 채취한 49개 시료에 대한 밀도와 연소도를 핫셀 시험을 통하여 측정하고, 이 결과로부터 부피변화 곡선을 유도하였다. 또 이 곡선으로부터 스웰링 율을 산출하고, 이 값을 핵분열생성물의 생성만을 고려하여 구한 이론적인 예측치와 비교 평가하였다. 그 결과 스웰링 율은 0.091 %/(GWd/tU) 로 측정 되었는데, 이 값은 핵분열생성물의 생성만을 고려한 스웰링 율에 대한 이론적 예측치 0.088 %/(GWd/tU)와 큰 차이가 없었다. 이 것은 본 가압경수로 핵연료의 스웰링 현상은 주로 핵분열생성물의 생성에 기인한 부피변화인 것으로 판단된다.

Abstract

Density measurements of 49 UO₂ specimens from 17 PWR spent fuel rods irradiated in nuclear power plants(NPPs) in Korea, and the volume change curve(i.e., swelling curve and densification curve) were derived from the measurement data. The swelling rate was calculated from the swelling curve to be 0.091 %/(GWd/tU), which was relatively good agreement with the theoretical solid swelling rate of 0.088 %/(GWd/tU). This means that the swelling of the PWR fuels considered was mainly due to the solid fission products.

1. 서 론

핵연료의 연소중 부피변화 현상은 핵연료의 열적 및 기계적 특성을 변화시키고 펠렛-피복관 상호작용(pellet-cladding interaction, PCI)등 핵연료 성능의 중요한 인자중의 하나이다. 핵

연료의 연소중 부피변화는 서로 상반되는 2개의 기구, 즉 고밀화(densification)와 스웰링(swelling)현상에 의하여 일어나는데, 고밀화 현상은 연소초기에 핵연료내의 조그만 기공(pore)들이 소멸 또는 수축하여 생기는 부피의 감소현상이고 스웰링 현상은 핵분열생성물의 생성 또는 핵분열기체 기포(bubble)의 성장(growth) 및 합성(coalescence)에 의하여 부피가 증가하는 현상이다. 핵연료가 원자로 내에서 연소가 진행되는 동안 초기에는 고밀화 현상에 의하여 부피가 급격히 감소하다가 일정 연소도(분말의 제조특성에 따라 5~20 GWd/tU)에서 고밀화와 스웰링이 평형에 이르게 되고 그 이상의 연소도에서는 스웰링이 핵연료 부피변화의 중요한 기구가 된다.

스웰링은 저온에서 중요한 핵분열 수 의존적인 스웰링(핵분열생성물의 생성으로 인한 스웰링)과 고온에서 중요한 온도 의존적인 스웰링(핵분열기체 기포의 성장 및 합성으로 인한 스웰링)으로 크게 2가지로 분류할 수 있다. 그러나 외국의 실험결과에 의하면 핵연료의 온도가 약 1,200 °C 이하에서는 핵분열기체 기포의 성장이나 합성이 발생하지 않는 것으로 보고되어 있다[1, 2].

본 연구에서는 국내의 가압경수로인 KNPP-1에서 1 주기, 2 주기 및 3 주기 동안 연소한 핵연료봉 12개와 KNPP-2에서 2주기 및 3주기 동안 연소한 5개에서 핵연료봉에서 채취한 시료(UO₂) 등 모두 49개의 UO₂ 시료에 대하여 밀도와 연소도를 측정하고 그 결과를 선형 회귀 분석하여 고밀화 곡선과 스웰링 곡선을 구하였다. 또 여기서 구한 스웰링 율과 연소 중 핵연료의 부피 변화가 핵분열생성물의 생성에 의하여 일어난다는 가정 하에 이론적으로 산출한 값과의 비교를 통하여 스웰링 기구를 평가하였다.

2. 이론적 배경

가. 스웰링 율

스웰링은 조사 전 핵연료의 부피에 대한 부피증가의 비로서 정의된다. 즉,

$$\begin{aligned}
 (\Delta V/V) &= (V - V^0)/V^0 \\
 &= (\Delta V/V)_{fp} + (\Delta V/V)_{bubble} \dots\dots\dots (1)
 \end{aligned}$$

여기서, V^0 는 핵연료의 초기(연소 전) 부피이고 V 는 연소가 진행 중인 어느 시점의 부피이며, $(\Delta V/V)_{fp}$ 는 핵분열생성물의 생성에 의한 스웰링 항이고, $(\Delta V/V)_{bubble}$ 는 핵분열기체 기포(bubble)의 합성(coalescence)과 성장(growth)에 의한 스웰링 항이다. 전자는 핵연료의 온도에 무관하며 핵분열 수에 비례하는 스웰링 기구로 저온에서 중요하며, 후자는 온도에 비례하는 스웰링 기구로 고온(~1,200 °C 이상)에서 중요하다. 여기서 가압경수로 핵연료의 온도가 1,200 °C 보다 낮다고 가정하면, 핵분열 기체의 합성과 성장에 의한 스웰링이 무시할 만큼 적어지기 때문에 (1)식은 다음 식과 같이 표시할 수 있다.

$$\begin{aligned}
 (\Delta V/V) &= (V - V^o)/V^o \\
 &= (\Delta V/V)_{fp} \dots\dots\dots (2)
 \end{aligned}$$

또 초기 UO_2 분자수 밀도가 N_U^o 이고 연소도가 β FIMA(fissions per initial metal atom)인 핵연료를 가정하면 이 때의 부피 V , 우라늄 분자수 밀도 N_U , 플루토늄의 분자수 밀도 N_{Pu} 와 i -원소 핵분열생성물의 원자수 밀도 N_i 는 다음과 같이 표시할 수 있다.

$$V^o = v_U N_U^o \dots\dots\dots (3)$$

$$V = v_U (N_U + N_{Pu}) + \sum_{fp} v_i N_i \dots\dots\dots (4)$$

$$N_U = (1 - q)(1 - \beta) N_U^o \dots\dots\dots (5)$$

$$N_{Pu} = q(1 - \beta) N_U^o \dots\dots\dots (6)$$

$$N_i = Y_i \beta N_U^o \dots\dots\dots (7)$$

여기서 v_U 는 UO_2 분자 1개당 부피, v_i 는 i -원소 핵분열생성물 원자 또는 분자 1개당 부피, q 는 총 중금속(heavy metal) 원소의 원자 수에 대한 플루토늄 원자 수의 비 $\{= N_{Pu}/(N_U + N_{Pu})\}$, β 는 초기 중금속 원소의 원자 수에 대한 핵분열 수 $\{=(\text{fissions}/\text{cm}^3)/N_U^o\}$ 이다. 식 (3)~(7)을 식 (2)에 대입하여 정리하면 식 (2)는 다음과 같이 된다.

$$(\Delta V/V)_{fp} = \left\{ \sum_{fp} Y_i (v_i/v_U) - 1 \right\} \beta \dots\dots\dots (8)$$

또 스웰링 율은 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$\begin{aligned}
 (\Delta V/V)_{fp}/\beta &= 100 \left\{ \sum_{fp} Y_i (v_i/v_U) - 1 \right\}, \% / FIMA \text{ 또는} \\
 &= 0.105 \left\{ \sum_{fp} Y_i (v_i/v_U) - 1 \right\}, \% / (\text{GWd/tU}) \dots\dots\dots (9)
 \end{aligned}$$

나. 핵연료 분자당 부피

이산화 우라늄의 결정구조는 이산화 플루토늄과 마찬가지로 단위 셀당 4개의 이산화 우라늄 분자를 포함하는 형석구조(fluorite structure)로 되어있다. 이산화 우라늄의 상온에서의 격자상수는 5.470 Å 이고, 이산화 플루토늄도 이와 비슷하기 때문에 분자 당 부피는 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$v_U = (5.470 \times 10^{-8})^3 / 4 = 40.93 \times 10^{-24} \text{ cm}^3/\text{UO}_2$$

$$= v_{Pu} \dots\dots\dots (10)$$

다. 핵분열생성물의 분류 및 분자당 부피

우라늄이 핵분열하면 약 2개의 가벼운 핵종, 즉 핵분열생성물이 생성되는데 이 핵분열 생성물은 화학적 또는 물리적 상태에 따라 우라늄 격자에 용해되어 존재하는 용해성 핵분열 생성물(soluble fission products), 금속 개재물(metal inclusions), 알카리 금속 산화물 형태의 개재물(alkaline earth oxide inclusions), 불활성 기체와 그 외 기타 핵분열생성물 등으로 크게 구분할 수 있다. 표 1에는 물리적 및 화학적 형태가 비슷한 핵분열생성물을 6개의 군으로 구분하여 각각의 특성과 분자 당 부피를 Anselin [3] 과 Olander [4] 의 자료에서 발췌하여 제시한 것이다.

라. 핵분열생성물의 생성에 의한 스웰링 율

핵분열생성물의 생성에 의한 스웰링 율은 표 1에 주어진 분자 당 부피를 이용하여 식 (9)로 구할 수 있다. 즉,

$$(\Delta V/V)_{fp}/\beta = 100(1.842 - 1) = 84.2 \text{ \%}/FIMA$$

$$= 0.105(1.842 - 1) = 0.088 \text{ \%}/(\text{GWd}/\text{tU}) \dots\dots (11)$$

표 1. Classification of Fission Products and Swelling due to Fission Products in Pure Uranium Dioxide Fuel

Group	Elements	Chemical Form	Fission Yield (Y_i)	Partial Volume ($v_i, \text{\AA}^3$)	v_i/v_U	$Y_i(v_i/v_U)$
Soluable Fission Products	Nb+ Mo+ Zr(sol)	MO ₂	0.149			
	Y+ rare earths	M ₂ O ₂	0.534			
	Subtotal		0.683	40.93	1.00	0.683
Metal Inclusions	Mo	Element	0.240			
	Ru+ Tc+ Rh+ Pd	Element	0.263			
	Subtotal		0.503	14.73	0.36	0.181
Alkaline Earth Oxide Inclusions	Ba+ Sr	BaZrO ₃ , SrZrO ₃	0.149	71.20	1.74	0.258
Alkali Metal	Cs+ Rb+ I+ Te	Ionic Solid	0.238	31.10	0.76	0.181
Inert Gas	Kr+ Xe	Elemental Gas	0.250	85.00	2.07	0.518
Other Fission Products	Ge+ Se+ Br+ Ag + Cd+ Sn+ Zn	Ionic Solid	0.027	31.10	0.76	0.021
Total						1.842

3. 실험

가. 시험대상 핵연료

국내 가압경수로 KNPP-1에서 1주기, 2주기 및 3 주기 동안 연소한 12개의 연료봉에서 채취한 35개의 이산화 우라늄 시료와 KNPP-2에서 2주기 및 3주기 동안 연소한 5개의 연료봉에서 채취한 이산화 우라늄 시료 14개 등 모두 49개의 시료를 시험대상으로 하였다. 표 2에는 이 핵연료 시료의 초기밀도와 농축도(공칭 설계자료)를 각 배치(batch)별로 구분하여 제시한 것이다.

표 2. Initial Fuel Data (Nominal Design Value)

NPPs	Batch ID	No. of Samples	No. of Cycles Irradiated	Item	Value
K1	A	12 (2)*	1	Material	UO ₂ sintered
		6 (3)	2	Density	94.3% of TD
	C	10 (4)	3	Enrichment	2.122 wt. % of U ²³⁵
				Material	UO ₂ sintered
	D	5 (2)	2	Density	94.6 % of TD
				Enrichment	3.199 wt. % of U ²³⁵
	G	2 (1)	2	Material	UO ₂ sintered
				Density	94.7 % of TD
K2	Q	11 (4)	3	Enrichment	3.199 wt. % of U ²³⁵
				Material	UO ₂ sintered
	R	3 (1)	2	Density	95.7 % of TD
				Enrichment	3.80 wt. % of U ²³⁵
Total		49 (17)			

* () 안의 숫자는 핵연료 봉 수.

나. 밀도측정

각 시료의 밀도측정은 톨루엔을 침적용액으로 이용한 수침 법으로 밀도를 측정하였으며 측정오차는 시편에 따라 약간의 차이가 있었으며, 그 범위는 ±(0.010~0.019) g/cm³ 이었다.

다. 연료소자 연소도 결정

각 시료의 연소도는 핵연료봉 축방향에 대하여 Cs-137 감마 스캐닝을 수행하여 상대적 연소도 분포를 구하고 이 값을 Cs-134와 Cs-137의 방사능 비 또는 화학분석법(Nd-148 정량법)에 의하여 구한 절대연소도 값으로 정규화(normalization)하여 결정하였다.

4. 결과 및 고찰

표 3에는 밀도 측정 결과를 연소도 및 이론밀도(theoretical density)의 백분율과 함께 나타내었다. 연소중 핵연료의 부피변화 거동을 평가하기 위하여 표3의 밀도를 부피의 변화로 환산하고, 이 결과를 연소도의 함수로 회귀분석하여 부피의 변화 곡선과 스웰링 곡선 및 고밀화 곡선을 구하였으며 그림 1은 이 곡선을 도시한 것이다.

표 3. Result of Density Measurements

Plant	Batch	Sample ID	Local Burnup (GWd/tU)	Density		Volume Change (%)	Initial Density (g/cm ³)	
				g/cm ³	Deviation			
KNPP-1	A	A17D5-1	5.350	10.430	0.010	-0.729	10.354	
		A17D5-5	16.430	10.460	0.010	-1.013		
		A17D5-6	18.500	10.460	0.010	-1.013		
		A17D5-7	20.300	10.440	0.010	-0.824		
		A17N1-1	4.940	10.460	0.010	-1.013		
		A17N1-2	6.500	10.450	0.010	-0.919		
		A17N1-3	8.500	10.450	0.010	-0.919		
		A17N1-4	10.860	10.460	0.010	-1.013		
		A17N1-5	12.300	10.450	0.010	-0.919		
		A17N1-6	13.600	10.450	0.010	-0.919		
		A17N1-7	16.950	10.450	0.010	-0.919		
		A17N1-8	17.600	10.450	0.010	-0.919		
		A39D9-1	25.100	10.400	0.010	-0.442		
		A39D9-2	29.860	10.370	0.010	-0.154		
	A39D9-3	29.700	10.350	0.010	0.039			
	A39A6-2	24.020	10.440	0.010	-0.824			
	A39A6-3	23.850	10.500	0.010	-1.390			
	A39A7-1	10.900	10.510	0.010	-1.484			
	C	C15A6-1	33.710	10.360	0.010	0.261	10.387	
		C15A6-2	35.010	10.300	0.010	0.845		
		C15A6-3	35.010	10.370	0.010	0.164		
		C15N6-1	24.790	10.400	0.010	-0.125		
		C15N6-2	29.020	10.380	0.010	0.067		
		C15N6-3	29.470	10.380	0.010	0.067		
		C15D9-1	19.260	10.440	0.010	-0.508		
		C15D9-3	34.900	10.370	0.010	0.164		
		C15E11-2	35.890	10.360	0.010	0.261		
		C15E11-3	35.500	10.290	0.010	0.943		
D		D29A12-1	39.720	10.340	0.010	0.561		10.398
		D29A12-2	18.290	10.530	0.010	-1.254		
		D29A12-3	17.500	10.530	0.010	-1.254		
		D29A13-2	19.470	10.520	0.010	-1.160		
	D29A13-3	17.550	10.530	0.010	-1.254			
G	G33N1-1	8.300	10.530	0.010	-1.254	10.398		
	G33N1-2	17.510	10.440	0.010	-0.402			
KNPP-2	Q	Q17D11-2	47.297	10.341	0.011	1.422	10.488	
		Q17D11-6	48.003	10.347	0.013	1.363		
		Q17D11-7	38.270	10.361	0.011	1.226		
		Q17A03-2	42.247	10.303	0.013	1.796		
		Q17A03-6	43.373	10.334	0.012	1.490		
		Q17A03-7	36.879	10.361	0.010	1.226		
		Q17M14-2	44.650	10.359	0.014	1.245		
		Q17M14-6	42.703	10.326	0.011	1.569		
		Q17M14-7	37.297	10.370	0.009	1.138		
		Q44A16-6	41.653	10.336	0.013	1.471		
	Q44A16-7	35.273	10.326	0.010	1.569			
	R	R41E06-4	36.216	10.367	0.019	0.984	10.469	
		R41E06-7	34.907	10.375	0.014	0.906		
		R41E06-9	28.824	10.411	0.013	0.557		

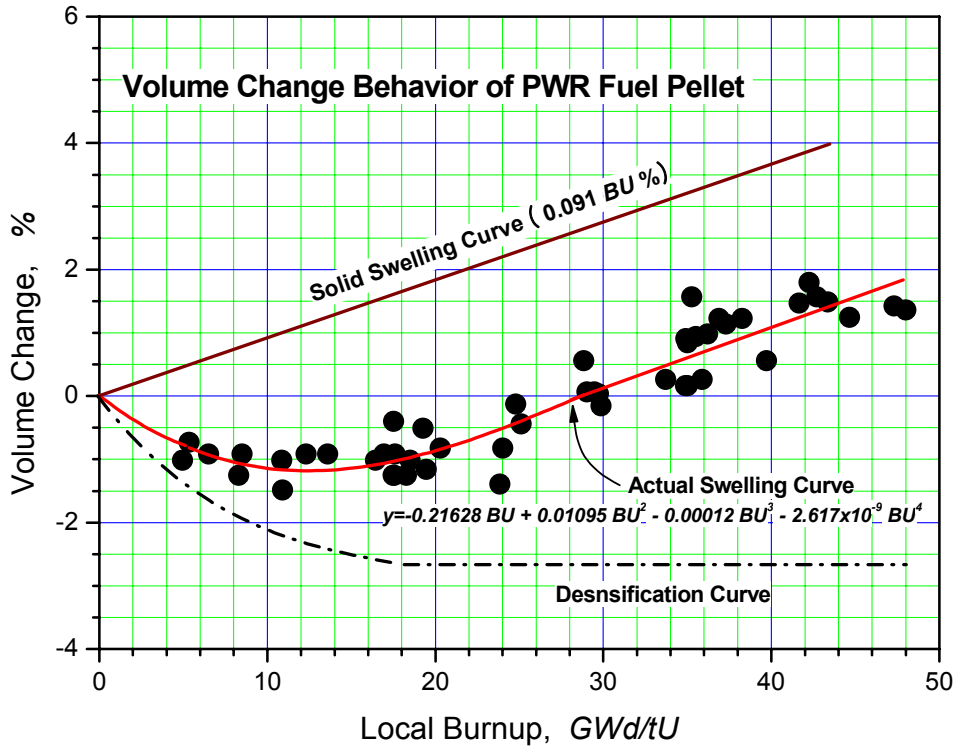


그림 1. Volume Change Curves obtained by Curve Fitting of the Density Measurement Data of KNPP-1 and KNPP-2 Fuels.

또 각 곡선을 식으로 표시하면 다음과 같다.

$$\begin{aligned} \%(\Delta V/V)_{actual} &= -0.21628 BU + 0.01095 BU^2 - 0.00012 BU^3 \\ &\quad + 2.617 \times 10^{-9} BU^4 \\ \%(\Delta V/V)_{solid} &= 0.091 BU \\ \%(\Delta V/V)_{densification} &= \%(\Delta V/V)_{actual} - \%(\Delta V/V)_{solid} \\ &= -0.12528 BU + 0.01095 BU^2 - 0.00012 BU^3 \\ &\quad + 2.617 \times 10^{-9} BU^4 \end{aligned}$$

여기서 BU 는 GWd/tU 단위로 표시된 연소도이다. 핵연료의 부피변화에 대한 회귀분석 결과 (그림 1 참조), 연소 초기에는 핵연료의 부피는 주로 고밀화 영향을 받게 되어 급격히 감소하

다가 12~15 GWd/tU 연소도 근방에서 고밀화와 스웰링의 평형이 이루어진다. 그 이상의 연소도에서는 고밀화에 의한 영향이 감소하여 부피는 서서히 증가하다가 20 GWd/tU 이상의 연소도가 되면 주로 스웰링 만의 영향을 받아 핵연료의 부피는 선형적으로 증가하였다. 핵연료의 부피가 선형적으로 증가하는 부분의 기울기, 즉 스웰링 율은 0.091 %/(GWd/tU)로 나타났으며, 이 값은 앞에서 구한 이론적 예측치 0.088 %/(GWd/tU)와 비교적 잘 일치하였는데, 이것은 핵분열기체 기포의 형성에 의한 스웰링이 거의 기여하지 못하였다는 것을 의미한다. 즉, 본 시험대상 핵연료의 부피변화 특성으로 판단할 때 스웰링은 주로 핵분열생성물의 생성에 기인한 것으로 믿어진다.

5. 결론

국내 가압경수로에서 연소한 핵연료에 대한 밀도 측정시험 결과와 스웰링 율에 대한 이론적인 예측치 및 외국의 관련 실험자료를 비교분석한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

가) 핵연료의 부피변화를 연소도의 함수로 회귀분석하여 얻은 부피변화 곡선은

$$\%(\Delta V/V)_{actual} = -0.21628(BU) - 0.01095(BU)^2 - 0.00012(BU)^3 + 2.617 \times 10^{-9}(BU)^4$$

이었다.

나) 핵연료 부피변화에 회귀곡선으로부터 구한 스웰링 율은 0.091 %/(GWd/tU)이었으며, 이 값은 핵분열생성물의 생성만에 의하여 스웰링이 일어난다는 가정 하에 이론적으로 구한 스웰링 율 0.088 %/GWd/tU 과 비교적 잘 일치하였다.

다) 본 핵연료의 스웰링은 주로 핵분열생성물의 생성에 의한 부피증가인 것이라 판단된다.

참 고 문 헌

1. S. R. Pati, H. R. Freeburn, and L. V. Corsetti, "Fission Gas Release from PWR Fuel Rods Under Conditions of Normal Operation and Power Ramping," in *ANS Topical Meeting on LWR Extended Burnup Fuel Performance and Utilization*, pp. 3-59(1982).
2. R. Manzel, F. Sontheimer, and H. Stehle, "Fission Gas Release Under Steady and Transient Conditions up to High Burnup," in *Proceedings of ANS Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, pp. 4-33(1985).
3. D. R. Olander, *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Element*, TID-26711-P1(1976).
4. F. Anselin, "The Role of Fission Products in the swelling of Irradiated UO_2 and $(U, Pu)O_2$ Fuel," GEAP-5583(1969).

5. T. A. Coleman et als., "Effects of Extended Burnup on PWR Cladding and Fuel Properties," in *Proceedings of a Special Meeting on Post Irradiation Examination and Experience*, IAEA(1984).
6. "사용후핵연료 조사후시험(II), " IAEA 전문가 Dr. R. Wuertz 활용보고서, KAERI-PIED/NOTE-01/88(1988).
7. Y. Mishima and T. Aoki, "Proving Test on Reliability of BWR 8x8 Fuel Assemblies in Japan(IAEA-SM-288/58)," in *Proceedings of a Symposium on Improvements in Water Reactor Fuel Technology and Utilization*, IAEA(1986).