2003 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

UO_2 소결체 restructureing 모사 실험

Simulation of UO_2 pellet restructuring under radial temperature gradient

양재호, 강기원, 김종헌, 송근우

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

DEH(direct electrical heating)을 이용하여 연소 시 나타나는 핵연료 소결체의 반경 방향 온도 구배를 모사하였다. 이 장치를 통해 중심 온도가 2300℃ 이상이고 평균 온도 구배가 190K/mm인 온도 조건을 모사할 수 있다. 이 온도 조건에서 50분 동안 유지시킨 UO_2 소결체는 노내 조사 시 관찰되는 restructuring 조직과 유사한 조직을 가진다.

Abstract

A modified *out-of-pile* apparatus has been developed that simulates *in-reactor* thermal gradient in UO_2 pellet through direct electrical heating. The average thermal gradient of 190K/mm and center line temperature of 2300℃ could be achieved using this apparatus. The experimental results show that, under this condition, fuel restructuring similar to that occurred in actual in-reactor condition can be produced.

1. 서론

원자로에서 연소 중 UO_2 소결체는 핵분열에 의한 열을 발생한다. 발생열은 소결체 표면을 통해 방출되는데 UO_2 소결체의 열전도도가 낮기 때문에 소결체의 내부와 외부사이에 큰 온도 구배가 존재하게된다. 원자로 출력에 따라 평형 온도 구배가 정해진다. 운전 중 UO_2 소결체의 온도 증가와 온도 구배는 UO_2 결정립과 기공의 성장, 기공의 이동, 그리고 UO_2와 기공의 온도 편석 등이 발생하는 원인을 제공한다. 운전 중 일어나는 UO_2 소결체의 일련의 조직 변화를 restructuring이라고 한다[1]. 고속 증식로처럼 높은 출력으로 운전하는 경우나 사고 시에는 소결체의 중심 온도가 2000℃이상 증가하게 되고, 중심과 표면의 온도 차이가 1000℃이상이 되기도 한다. 이처럼 온도 구배가 큰 경우에는 소결체 중앙에 기공이 편석되어 void를 형성하고 주위에 columnar grian이 생성되며 columnar에서 소결체 표면 쪽에 결정립 크기가 성장하는 equi-axed grain growth 영역이 생성되게 된다. 이러한 restructuring 조직의 생성 기구에 대한 이해는 고속 증식로 운전 중 소결체 조직 변화에 따른 물성 변화에 대한 예측이나 LWR에서의 사고시 소결체 failure 현상에 대한 이해를 돕는다.

본 연구에서는 연소 시 핵연료 소결체의 반경 방향 온도 구배를 모사하여 온도와 온도 구배에 따른 소결체 restructuring 현상을 관찰하고자 한다. 원자로 운전 중 일어나는 UO_2 소결체의 온도 구배는 DEH(direct electrical heating) 방법을 이용하여 모사하였다[2-6]. 소결체 양단에 직접 DC 전류를 가하면 UO_2 소결체의 자체 저항에 의해 소결체에 열이 발생하게 된다. 이때 소결체 표면에서는 열이 방출되어 소결체에 온도 구배가 생긴다. 온도가 상대적으로 높은 영역에서는 저항이 감소하게 되어 더 많은 전류가 집중적으로 흐르게 된다. 온도가 높은 내부는 전류가 더 소모되어 온도 증가가 더 일어나게 된다. 이러한 상승 작용에 의해 소결체 내 외부의 온도 구배가 더욱 심화된다. 이 원리를 이용하면 원자로 내 온도 조건과 유사한 온도 구배를 재현할 수 있다.

2. DEH(direct electrical heating)시 UO_2 소결체의 반경 방향 온도분포

원자로에서 연소하는 소결체에 대하여 반경 방향과 축 방향의 중성자 속 밀도가 동일하여 소결체 전체에서 동일한 열량이 발생하고 이때 미소부피에서 발생하는 열량을 q라 하고, 소결체의 온도에 따른 열전도도(κ)가 동일하다고 가정하면 반경 방향 온도 분포는 다음과 같이 얻어진다.

$$T_r = T_m - q\frac{r^2}{4k} \qquad \text{식 1}$$

그러나 실제 거의 모든 물질은 온도에 따라 일정한 열전도도 값을 가지지 않는다. 산화물 핵연료의 경우 운전 온도 영역에서 온도 증가에 따라 열전도도가 감소한다. 또한 열전도도의 온도 증가에 따른 감소 양상도 핵연료의 연소도(burn up)나 초기 장입된 소결체의 특성에 따라 많이 달라지게 된다. 조사되지 않은 UO_2 소결체서의 열전도도의 온도 의존은

$$\kappa(T)=\frac{1}{0.035+2.25\times10^{-4}T}+83.0\times10^{-12}T^{3}\ \ (W/m\cdot K) \qquad \text{식 2}$$

을 따른다.[7].

열전도도 변화를 고려할 경우, 표면 부근에서는 온도가 낮아 평균 열전도도 보다 열전도도가 크기 때문에 상대적으로 낮은 온도를 가지며 중심부로 가면 열전도도가 평균값보다 낮아지기 때문에 상대적으로 높은 온도를 가지게 된다. 소결체 내의 중성자 속 밀도나 조직 변화 등을 모두 고려하면 실제 온도 분포와는 상이할 수 있다.

DEH(direct electrical heating)법을 이용하여 얻어지는 UO_2 소결체의 반경방향 온도 구배가 실제 원자로 운전 중 소결체가 느끼는 온도 구배와 유사한가를 확인하는 것이 중요하다. 식 1은 소결체 내부에서 위치에 관계없이 동일한 열량이 발생한다는 가정 하에 얻어진 결과이다. DEH법을 이용하여 소결체 시편을 가열하는 경우는 소결체에서 발생하는 열량이 위치에 따라 일정하지 않다. 전기저항에 의해 단위 부피에서 발생하는 열량은 단위 부피의 저항에 반비례한다. 그런데 UO_2에서 전기 전도도는

$$\sigma(T)=2600\cdot\exp(-1.07eV/kT)\ mho/cm \qquad \text{식 2}$$

의 관계를 가진다[8].

따라서, 온도가 높은 중심에서는 저항이 낮아져 발생 열량이 상대적으로 높아지게 되며 온도가 낮은 표면에서는 높은 저항으로 인해 발생 열량이 상대적으로 작아진다. 이러한 반경방향으로의 열량 분포 변화 때문에, 식 1을 DEH에서의 반경 방향 온도 분포를 계산하는데 적용할 수 없다.

반경방향으로 출력과 열전도도가 상이한 분포를 가지는 fuel rod에서의 반경방향 온도 분포는 열평형 방정식으로부터 유도된 다소 복잡한 형태의 미분 방정식을 수치 해석적으로 풀어야 한다. 그러나 우리가 표면 온도를 비교적 정확하게 측정하고 온도에 따른 저항과 열전도도 변화에 대한 정보가 있으면 좀 더 간단한 방법으로 소결체의 온도 분포를 예측할 수 있다[6].

그림 1과 같은 원통형 fuel rod에서 짙은 색으로 표시한 최 외곽 shell을 고려해 보자. 정상 상태에서 최 외곽 shell의 열 평형 방정식은 다음과 같다.

$$N^{j}_{n\to out}=N^{el}_{n}+N^{j}_{n-1\to n} \qquad \text{식 3}$$

여기서 $N^{j}_{n\to out}$은 표면에서 외부로 빠져나가는 열량이며 정상상태일 경우 단위 시간당 소결체에서 발생하는 총 열량을 나타내는 상수 값이다. 또한 N^{el}_{n}은 n_{th} cylindrical shell에서 전기저항에 의해 발생하는 열량이며, $N^{j}_{n-1\to n}$은 $(n-1)_{th}$ cylindrical shell에서 n_{th} shell로 전달되는 열량이다. 이를 고려한다면 식 3은 다시 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$N^{j}_{n\to out}=\frac{V^{2}\cdot\pi\cdot\left(r_{n}^{2}-r_{n-1}^{2}\right)\cdot\sigma\left(\overline{T}\right)}{l}+2\pi\cdot r_{n-1}\cdot l\cdot\kappa(\overline{T})\cdot\frac{T_{n-1}-T_{n}}{\Delta r} \qquad \text{식 4}$$

여기서 $V, \sigma(\bar{T}), \kappa(\bar{T}), l$는 각 각 시편에서의 전압강하, n_{th} shell에서의 평균 전기전도도, 평균 열전도도 그리고 시편의 길이를 나타낸다. 따라서 shell의 두께가 매우 얇아서 평균 전기전도도와 평균 열전도도가 표면온도의 그것과 동일하고, 표면온도인 T_n을 알고 있다면 위 식 4로부터 T_{n-1}을 구할 수 있다. $(n-1)_{th}$ shell에 대한 열평형 방정식도 식 4와 동일하게 나타낼 수 있다.

$$N^{j}_{n-1\to n} = N^{el}_{n-1} + N^{j}_{n-2\to n-1} \qquad \text{식 5}$$

식 5에 식 4로부터 구한 T_{n-1}을 대입하면 T_{n-2}를 구할 수 있다.

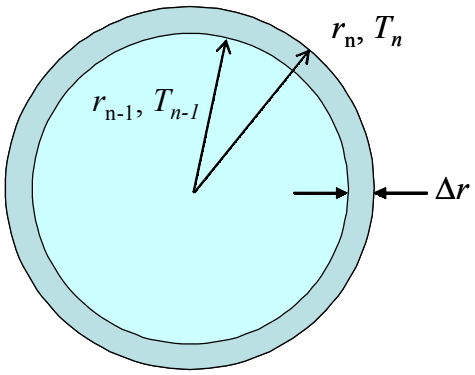

그림 1. Cylindrical fuel-type element

소결체를 매우 얇은 원통형 shell로 나누어 표면부터 반복하여 계산하면 소결체 전체의 온도 분포를 비교적 간단하게 구할 수 있다. 이때 각 shell에서 전기저항에 의해 발생하는 열량의 총합은 $N^{j}_{n\to out}$이 되어야 한다.

그림 2에 소결체에서 발생하는 총 전기 저항열이 3kW이고 표면 온도가 800℃인 소결체의 반경방향 온도분포를 계산한 결과를 보인다. 반경이 5mm인 소결체를 100개의 shell로 분리하여 계산하였다. 온도에 따른 열전도도와 전기전도도 변화는 식 2와 식3을 이용하여 구하였다. DEH에서 나타나는 온도 분포를 핵분열에서 나타나는 온도 분포와 비교하기 위해 선출력이 450W/cm인 경우의 온도 분포를 함께 도시하였다. 그림 2에서 보면 동일한 표면온도와 동일한 중심온도를 가지는 경우 DEH와 핵분열에 의해 형성되는 반경방향 온도 분포는 서로 상이한 것을 알 수 있다. 따라서, DEH를 이용하여 연소 시 나타나는 핵연료 소결체의 조직 변화거동을 예측하려면 관찰하고자 하는 부위와 온도 구배가 유사한 조건을 찾아야 한다. 그림 2에 연소 시 중심부근의 온도 분포와 유사한 온도분포를 가지는 DEH조건을 도시하였다. 그림에서 알 수 있듯이 중심부분의 온도 분포를 일치시키면 DEH에서 표면

온도가 연소 시 표면 온도 보다 높아지게 된다.

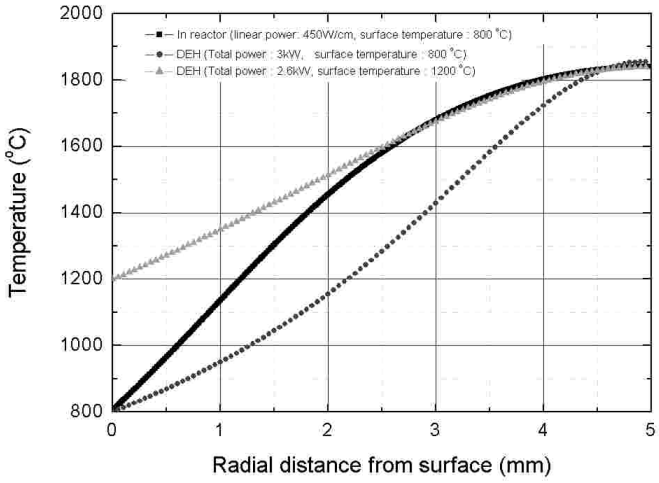

그림 2. DEH와 핵분열로 인해 형성되는 UO_2 소결체 내부의 반경 방향 온도 분포 비교

3. 실험 방법

그림 3은 실험에 사용한 장치 DEH 장치의 개략도를 보인다. 이 장치는 DC전류를 UO_2 소결체에 직접 흘려 온도를 올리는 기본 개념에, 소결체 예열을 위한 AC 전기로를 추가 장착한 특징을 가진다. 소결체 예열로는 다음과 같은 이점을 가진다. 첫째, UO_2 소결체는 온도에 따른 저항 특성이 매우 달라서 1000℃이하에서는 소결체의 온도를 높이기 위해 매우 높은 DC 전압을 부과해야 한다. 그러나 본 장치는 예열로로 충분히 높은 온도를 미리 소결체의 온도를 높이기 때문에 초기 DC 전압을 높일 필요가 없다. 둘째, 핵연료가 노내에서 정상적으로 연소하는 경우, 표면온도는 일정한 온도를 가지는 냉각수에 의해 냉각되므로 출력등의 변화는 소결체의 중심 온도와 분포에만 영향을 미친다. 그러나 DEH 장치의 경우 특정 출력에서의 정상상태는 주위의 기기 환경(온도, 습도등에 의한 열전달, DC 전류 부과 이력)등에 의해 영향을 받는다. 따라서 표면온도와 내부 온도를 일정하게 유지하기 어렵다. 그러나 본 장치는 예열로가 있기 때문에 표면온도를 자유롭게 조절할 수 있으므로 원하는 소결체 온도 분포를 비교적 쉽게 이룰 수 있다.

소결체 승온을 위한 전기 출력은 소결체 내부 온도를 기준으로 하였다. 이를 위해 그림 4처럼 소결체 표면에서 내부로 중심 부근까지 구멍을 뚫고 pyrometer를 이용해 온도를 측정하였다. Pyrometer로 읽은 온도는 controller로 feedback되어 PID방법으로 원하는 온도로 맞춘다. Pyrometer로 읽는 온도의 신뢰도를 측정하기 위해 같은 위치의 반대편에 구멍을 뚫고 C-type thermocouple을 이용하여 온도를 측정하고 이를 pyrometer 온도와 비교하

였다. 이때 thermocouple이 시편에 직접 닿는 것을 방지하기 위해 thermocouple은 Hf_2O_3로 절연하였다. 측정된 온도를 비교하면 pyrometer의 온도가 thermocouple 온도보다 약 50 ~ 100℃정도 낮게 읽는다. Pyrometer로 측정하는 부위가 직경이 작은 구멍이지만 표면에 노출되어 있기 때문이다. 소결체 표면온도 측정은 C-type Thermocouple을 이용하였다.

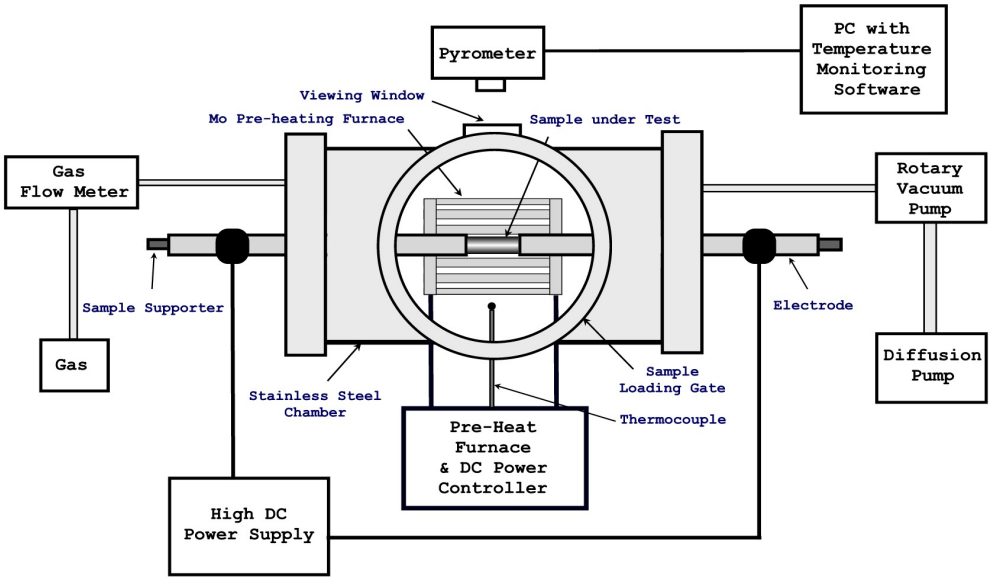

그림 3. DEH 장치 개략도

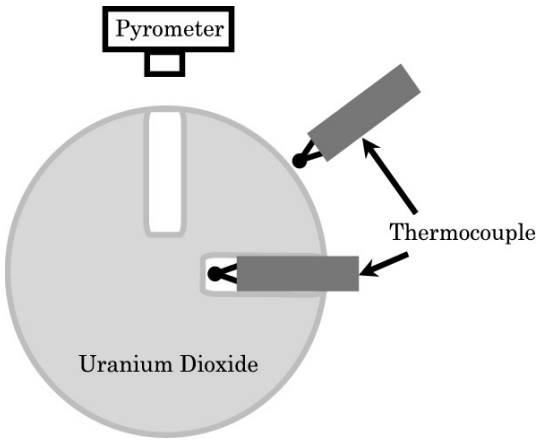

그림 4. 소결체 내 외부 온도 측정 방법

4. 실험 결과

그림 5는 원자로에서 연소 중 restructuring이 일어난 전형적인 UO_2 소결체 조직을 보인다. 온도 구배로 기공들이 중심으로 편석하여 void가 형성된다(1구역). Void 주위는 중심 쪽 끝단이 렌즈 모양의 기공인 columnar grain들이 둘러싼다(2구역). 더 외곽 쪽은 결정립 크기가 큰 등축의 결정립들이 존재한다(3구역). 표면 쪽은 결정립 조직의 변화가 거의 없이 초기 상태의 소결체 조직을 유지한다(4구역).

온도 구배에 의한 restructuring 조직의 형성 기구는 대략 다음과 같이 설명한다. 온도 구배가 존재하는 경우 결정립계나 기공의 mobility도 구배가 생기게 되어 온도가 높은 중심 쪽으로 갈수록 기공이나 결정립 성장 속도가 커지게 된다. 온도 구배에 의한 결정립 성장 속도의 구배로 3구역과 4구역의 생성을 쉽게 설명할 수 있다. 온도 구배에 따른 결정립계과 기공의 이동도 구배는 결정립 성장과 기공성장을 설명할 수 있으나 중심부로 향한 기공 편석은 설명하기 어렵다. Tikare[9]등은, Shewmon[10]이 두 상의 합금계에서 제시한 온도 구배로 형성되는 thermal segregation을 기공 편석에 적용하면 기공의 중심방향 이동을 설명할 수 있음을 제시하였다. 기공 편석과 UO_2 물질이동의 관계는 고려되지 않아 이들의 simulation으로는 columnar 조직 형성 기구를 설명하지 못한다. 일반적으로 columnar 결정립의 형성은 온도구배가 존재하는 기공의 뜨거운 영역에서 기화된 UO_2가 차가운 영역에서 증착되는 과정을 되풀이하면서 중심 쪽으로 성장하는 과정에서 생성된다고 보고 있다[11, 12]. 그러나 현상학적인 설명 외에 구체적인 이론적 설명은 아직 이루어지지 않고 있다.

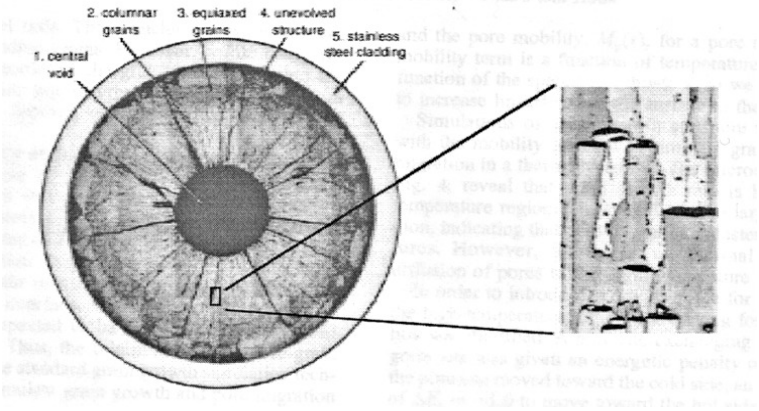

그림 5. 노 내 연소 시 형성되는 UO_2 restructuring 조직

지름이 10mm인 UO_2 소결체를 실험에 이용하였다. 그림 6은 표면 온도 1350℃, 중심 온도 2300℃인 상태에서 20분 유지한 소결체의 조직 사진을 보인다. 그림 6에서 보면 중심에서 반경이 1.5mm인 원 안의 조직과 원 외의 조직이 서로 다른 것을 알 수 있다. 왼편 위에 나타낸 경계면 사진을 보면 커다랗게 성장한 결정립을 볼 수 있고 결정립계에는 다수

의 기공이 모여있는 것을 확인할 수 있다. 또한 경계면에서 표면 쪽에 가까울수록 결정립 크기가 감소하는 것을 확인할 수 있다. 경계면 내부를 보면 중심부로 가까울수록 기공의 전체적인 숫자는 감소하고 기공의 크기는 커진 것을 알 수 있다. 따라서 온도가 높은 중심부는 기공의 성장과 이동이 동시에 일어나고 있는 것을 알 수 있다. 이 조직은 소결체 restructuring의 초기 조직 형태를 가지는 것으로 생각된다.

그림 7은 그림 6의 시편과 거의 동일한 온도 구배를 가지지만 유지 시간을 50분으로 증가시켜 얻어진 조직사진을 보인다. 그림 6의 시편과 비교할 때 소결체 restructuring이 일어난 구간이 넓어지며 전형적인 restructuring 구조를 확인할 수 있다. 소결체 중심에는 void가 존재한다. 이 void는 기공들이 중심으로 확산되어 와서 편석되어 생성된 것으로 보인다. 중심에서 가장 가까운 영역은 수백 μm이상의 크기를 가지는 equi-axed grain 조직을 보인다. 표면 쪽으로 더 나가면 표면에서 중심방향으로 성장한 주상 결정립을 확인할 수 있다. 주상 결정립 경계에 많은 기공들이 모여있다. 또한 결정립 내부의 기공 숫자는 매우 적으나 크기는 크다. 표면 쪽으로 더욱 가까워지면 주상결정립 조직은 사라지고 수십에서 수백 μm의 지름을 가진 equi-axed 결정립들로 이루어진 조직이 나타난다. 표면 부위 조직은 거의 변화가 없이 초기 상태를 유지하고 있다.

그림 8은 식 3~5를 이용하여 표면온도와 내부온도가 실험 조건과 같을 때 나타나는 소결체 내부 온도 분포를 계산한 결과이다. 소결체 온도 구배도 함께 나타내었다. 소결체 온도 분포와 연관하여 소결체 조직을 설명하면, 소결체 중심은 온도는 높지만 열구배는 크지 않으므로 기공 내에서의 온도 구배에 따른 기화와 증착에 의한 기공 이동 속도보다 결정립 성장의 속도가 커서 등축 방향의 큰 결정립이 성장하는 것으로 보인다. 주상 결정립 조직을 가지는 영역은 온도도 높고 온도 구배도 크다. 그러나 표면으로 갈수록 온도 구배는 크지만 온도가 낮아져 기공내의 UO_2 기화 증착에 의한 물질 이동이 어려워지는 것으로 보인다.

그림 9는 표면온도 1550℃, 중심온도 2500℃를 유지한 상태에서 30분 유지한 후 얻어진 소결체의 조직 사진이다. 조직사진에서 보면 소결체 표면 근처까지 restructuring이 일어난 것을 확인할 수 있다. 특히 주상 결정립 조직이 매우 잘 발달되어 있으며 주상 결정립 주위에 기공의 편석이 두드러진다.

노내 연소시 restructuring 조직의 또 하나의 특징은 주상 결정립 끝단에 렌즈형태의 기공 편석이 생성되는 것이다. 그러나 본 실험에서 모사한 restructuring 구조에서는 렌즈형태의 기공 편석은 발견하지 못하였다. 다른 연구자들이 DEH를 이용하여 재현한 restructuring 조직에서도 렌즈 형태의 기공 편석이 재현되지 않는다. 연소 도중에는 다양한 핵분열 생성물들이 생성되며 이 중에는 기상의 핵분열 생성물도 존재하게 된다. 기체 상의 핵분열 생성물은 기공 내에 존재할 가능성이 높고 이 기공들의 확산 거동은 모사에 사용된 UO_2 소결체 내의 기공 확산 거동과는 차이가 있을 것으로 생각된다.

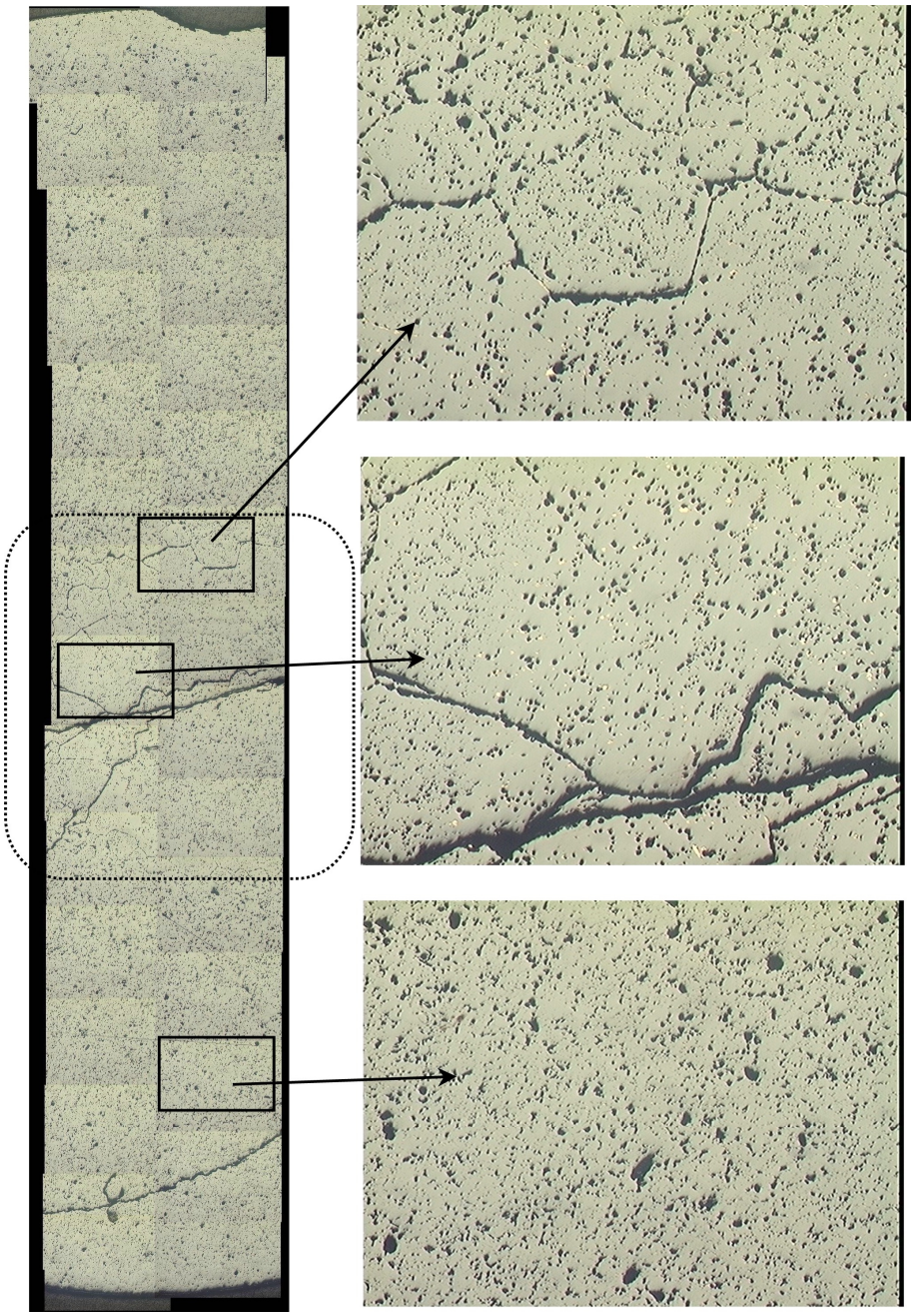

그림 6. 중심온도 2300℃, 표면온도 1350℃의 환경에서 20분 유지한 UO_2 소결체의 단면 조직

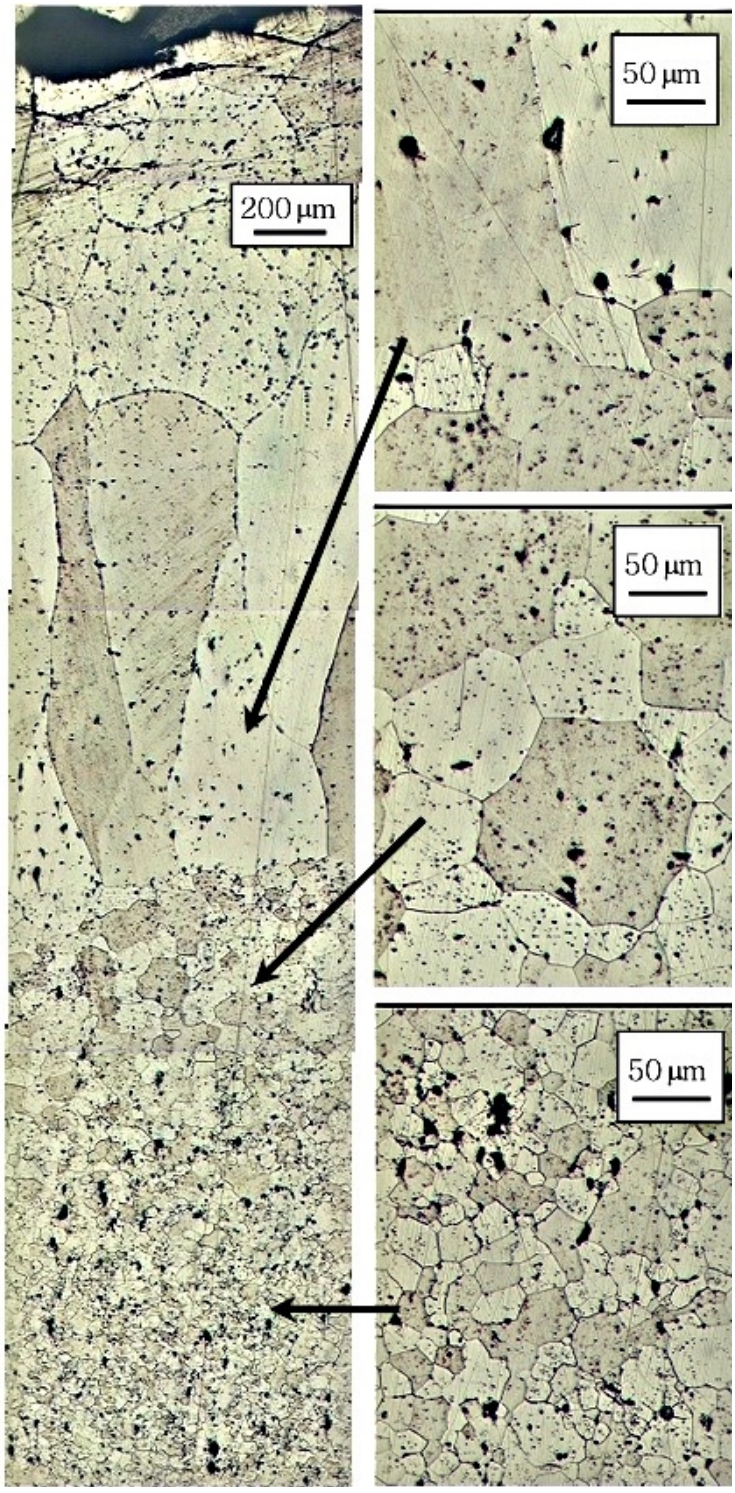

그림 7. 중심온도 2300℃, 외부온도 1350℃의 환경에서 50분 유지한 UO_2 소결체의 조직

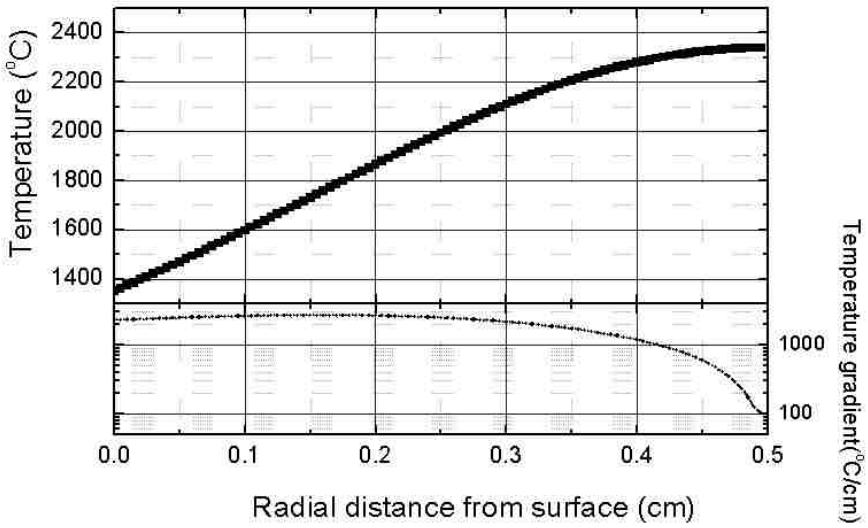

그림 8. 그림 7 소결체의 반경방향 온도 분포 계산 값

그림 9. 중심온도 2500℃, 온도 구배 190K/mm의 조건에서 30분 유지한 소결체의 조직

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 사업의 일환으로 수행되었음

참고 문헌

[1] Lambert, J.D.B., & Strain, R., *Material Science and Technology Vol. 10A, Nuclear materials -part1, chapter 3. Oxide Fuels,* edited by Frost, B.R.T., VCH Publishers (1994) 155 -164

[2] Wrona, B.J., Robert, J.T.A., Johanson, E., & Tuohig, W.D., *Neutron Technology*, 20 (1973) 114 -123

[3] Robert, J.T.A., Wrona, B.J., Fischer, D., & Buzzell, J.A., *Neutron Technology*, 27 (1975) 267 -272

[4] Wrona, B.J., & Johanson, E., *Neutron Technology*, 29 (1976) 433 -442

[5] Sari, C., *Neutron Technology*, 35 (1977) 145 -153

[6] Antony, M.P., Daniel, J., & Mathews, C.K., *Neutron Technology*, 117 (1997) 299 -305

[7] Washinton, A.B.G, *United Kingdom Atomic Energy Authority Report TGR R -2236(D)*

[8] Killeen, C., *J. Nucl. Mat.*, 88(1980) 185 -192

[9] Tikare, V., & Holm, E.A., *J. Am. Ceram. Soc.*, 81 (1998) 480 -484

[10] Shewom, P.G., Diffusion in Solids, *J. Williams, Jenk, OK*, (1983) 188 -193

[11] MacEwan, J.R., & Lawson, V.B., *J. Am. Ceram. Soc.*, 45 (1962) 42 -46

[12] Nichols, F.A., *J. Nucl. Mat.*, 84 (1979) 1 -25