2003 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

공융침투율모델 개선에 의한 피복관 건전성 분석

The Analysis of the Cladding Integrity by the Upgrade of the Eutectic Penetration Rate Model

이병운, 이동욱, 김영균, 김영일
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

KALIMER 핵연료로 U-TRU-Zr 합금형 연료가 고려되고 있으며, 합금형 연료 성능분석을 위하여 MACSIS가 개발되고 있다. 본 논문에서는 KALIMER 핵연료봉의 건전성을 확보하기 위하여, 주요 현안이 되고 있는 공융 특성에 대한 분석을 수행하고 이들이 연료봉에 미치는 영향을 평가하였다. 즉 기존 실험데이터 및 모델을 기반으로 새로운 모델을 도출한 후 연료봉에 미치는 영향을 분석하였다. 분석결과 기존의 모델은 너무 보수적인 것으로 나타났으며, 어느 정도의 공융은 허용할 수 있는 것으로 평가되었으나, 공융현상에 대한 모델의 불확실성을 고려하여 실험결과에 의한 검증이 필요하다.

Abstract

U-TRU-Zr alloy fuel is being considered as the fuel for the KALIMER in Korea. The MACSIS for an alloy fuel is being developed as the steady-state performance computer code. In this paper, the eutectic reaction, one of the major issues in the alloy fuel, was analyzed for keeping the integrity of the KALIMER fuel. So new model was derived based on the existing experimental data and old model, then the sensitivity analyses of the eutectic behavior were performed by the inserted new model. The results indicate the old model was too conservative, and small eutectic phase formation was allowed. However, there are uncertainties on the modeling, so some experimental tests are needed for clarifying the uncertainties of fuel modeling.

1. 개요

KALIMER 핵연료로 U-TRU-Zr 합금형 연료가 고려되고 있으며, 합금형 핵연료 성능분석을 위하여 MACSIS가 개발되고 있다. 합금형 금속연료는 매우 우수한 성능을 가진 연료로 고려되고 있으나, 금속연료의 특성상 연료심과 피복관간의 공융현상은 주요 현안이 되고 있다. 즉 U-TRU-Zr 연료심 성분이 피복재의 주성분 원소인 철과의 반응으로 각 성분들의 융점보다 낮은 온도에서 공융현상이 일어날 수 있다. 그 중 Pu와 피복재의 대표적 성분인 Fe의 화학적 상호작용이 가장 낮은 온도에서 일어나므로 가장 심각한 대상이 된다. 그 외 U, Zr, Am, Np 등의 성분들은 Pu-Fe의 공정반응을 늦추거나 가속화시키는 역활을 한다.

U-TRU-Zr핵연료의 성분은 연소조건에 따라 다를 뿐만 아니라 여러 가지 복합조성을 가지므로 피복재와의 공정반응에 관하여 쉽게 예측하기는 매우 어렵다. 실험 또한 주성분인 Pu를 취급하여야 하는 현실적 어려움 때문에 그 자료도 많지 않다.

본 논문에서는 기존의 실험데이터 및 연료성분에 대한 상태도를 기반으로 공융자료를 검토하였으며, 기존의 공융침투모델을 보정하였다. 또한 보정된 공융침투모델을 이용하여 피복관 건전성에 미치는 영향을 MACSIS 코드를 이용하여 분석하였다. 이 논문은 핵연료의 건전성평가를 위하여 공융침투모델 변경에 따라 합금형 핵연료가 어떠한 성능을 나타낼 지를 예상하기 위한 것이며, 정확한 공융침투모델 및 건전성 평가는 실험으로 검증되어야 할 것이다.

2. 공융자료 검토

공융은 금속연료의 주요 현안중의 하나이며, 특히 Pu과 Fe와의 공융점은 410°C이기 때문에 공융에 가장 큰 영향을 미칠 것으로 평가된다.

U-TRU-Zr 핵연료심의 대표적 성분인 Pu와 피복재의 대표적 성분인 Fe의 이원계 상태도(그림 1)를 분석하면, Pu의 융점은 640 ℃ 로 비교적 낮은 온도에서 용해되고, 이에 반하여 Fe는 융점이 1538 ℃ 로 매우 높다는 것을 알 수 있다.

그러나 Pu-Fe의 이원계는 Fe_2Pu와 $FePu_6$의 2개의 금속간화합물을 갖고 있으며 특히 약 3wt%Fe에서 410℃의 공융점을 보인다.[1]

3wt% Fe에서 일어나는 410 ℃의 공정반응은 Pu 금속핵연료심과 Fe 피복재와의 경계부에서 Fe가 핵연료심 쪽으로 소량 확산될 때 핵연료심부에서 쉽게 공정반응에 의한 액체상이 출현할 수 있는 가능성을 암시해준다.

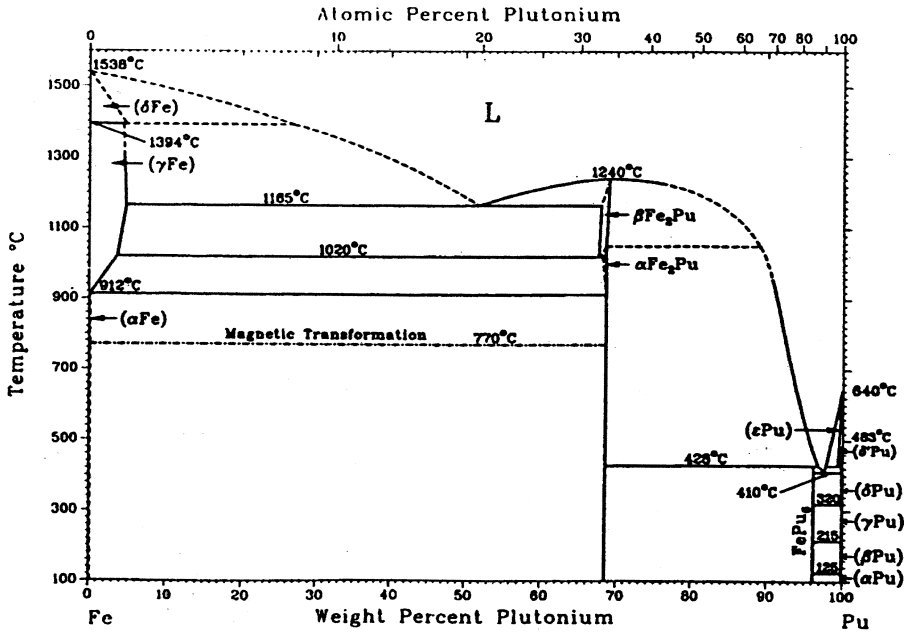

그림 1. Pu-Fe 상태도

U-TRU-Zr핵연료의 성분은 연소조건에 따라 변할 뿐만 아니라 여러 가지 복합조성을 가지므로 피복재와의 공정반응에 관하여 쉽게 예측하기는 매우 어렵다. 실험 또한 주성분인 Pu를 취급하여야 하는 현실적 어려움 때문에 그 자료도 많지 않다.

공융현상을 분석하기 위해, 연료심과 피복재의 접촉시 계면층에 존재하는 상과 그 구성요소를 분석한 후, 공융을 일으킬 수 있는 상을 확인하기 위한 실험이 수행되었으며, 그림 2는 923K에서의 U-Pu-Fe 상태도 및 그 구성요소를 나타낸다[2].

그림에서 보는 바와 같이 $(U,Pu)_6Fe$상에 포함되어 있는 최대 Pu 농도가 이 상에서의 Pu 용해도보다 적은 경우에는 반응층 어디에서도 액상이 형성되지 않는다고 분석된다. 그러나 Pu 농도를 증가시키면 $(U,Pu)_6Fe$상을 포함하는 영역에서 액상이 형성된다.

또한 HT9에 다른 원소를 첨가하거나 혹은 Zr의 양을 약간 변화시키는 연구도 수행되었으나 공융에는 크게 영향을 미치지 않는 것으로 분석되었다[2]. 즉 U-Pu-Zr/HT9의 경우 공융은 Pu의 양에 크게 좌우되므로, 기존의 실험데이터를 Pu의 양을 중심으로 분석하였다.

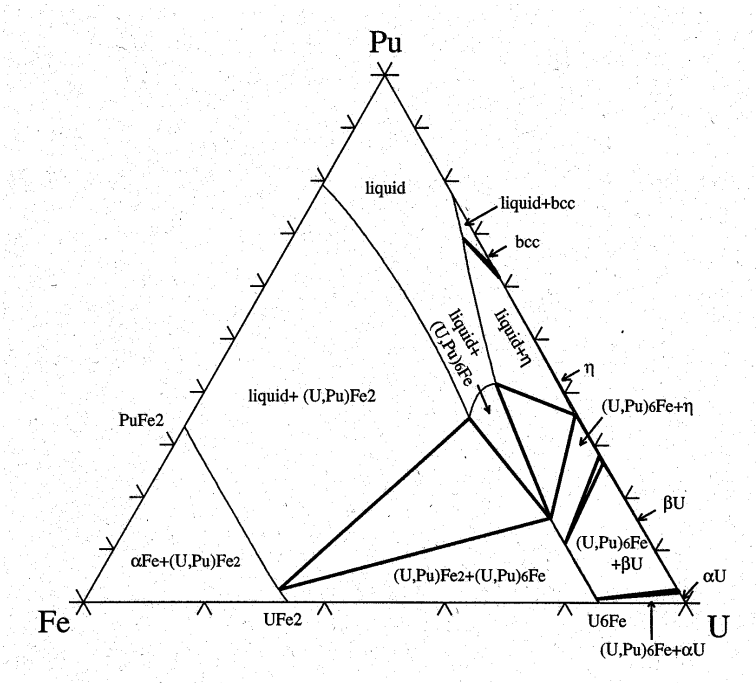

그림 2. 계면층에서의 U-Pu-Fe 상태도 및 구성요소

그림 3은 기존 실험에 의한 Pu/(U+Pu)에 의한 공융점을 나타낸다. 즉 U-Zr, U-Pu-Zr, U-TRU-Zr 합금과 Fe 및 HT9과의 공융실험 및 해석결과를 Pu 함량에 따라서 표시한 것이다. 그림에서 open legends는 공융이 일어나지 않은 실험결과이며, closed legends는 공융이 일어난 실험결과를 나타낸다.

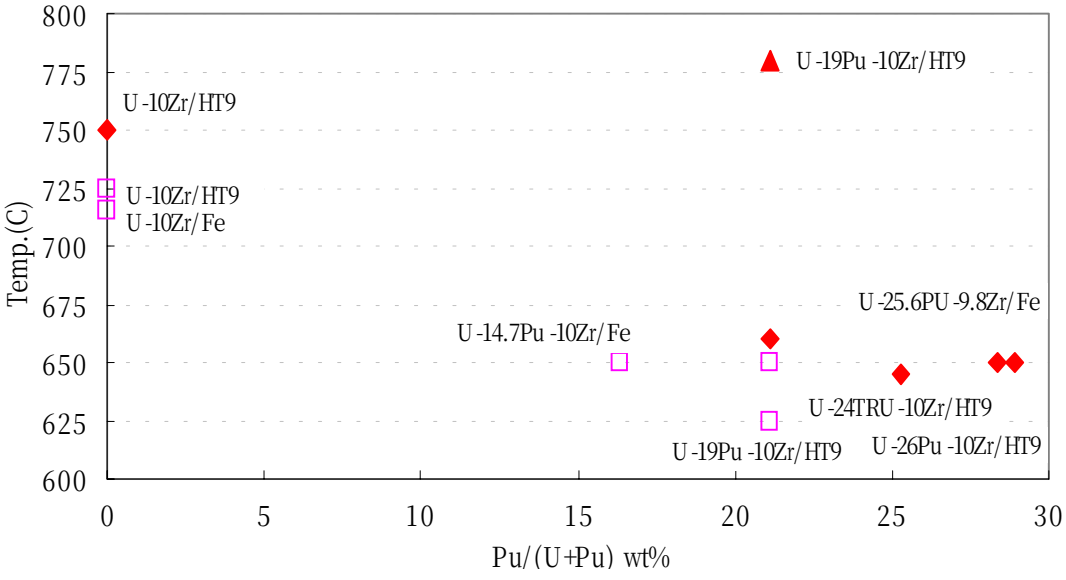

그림 3. 공융실험데이터

그림에서 보는 바와 같이 Pu이 없는 U-Zr 합금의 경우 공융온도는 약 750°C가 될 것이라고 분석된다. 또한 15wt% 정도의 Pu을 추가한 경우 약 650°C까지는 공융현상이 발생하지 않는다는 것을 알 수 있다. 그러나 19wt% 정도의 Pu에서는 약 675°C에서 공융이 일어났으며, 24wt% 정도의 Pu에서는 약 650°C 내외에서 공융이 일어난다는 것을 알 수 있다.

KALIMER 금속연료는 U-TRU-Zr을 고려하고 있기 때문에, 위의 공융온도와는 틀린 불확실성이 존재한다. 따라서 Pu이 대부분을 차지하는 TRU 함유 금속연료에서, TRU 함량에 따른 공융온도를 유추하기 위하여 위의 실험결과를 토대로 그림 4와 같이 액상선이 나오는 한계를 보수적으로 도출하였다.

그림에서 보는 바와 같이 15wt% TRU일 경우, 공융이 시작되는 피복재 내면온도는 보수적으로 670°C, 그리고 30wt%일 경우는 약 630°C 라는 것을 알 수 있다. 즉 실험에 의하여 공융이 확인된 함량은 19wt%-26wt% 정도의 Pu이었기 때문에 이 범위에의 함량에는 상당한 불확실성이 따른다. 따라서 보수적으로 15wt% TRU 함량이상의 연료에서는 약 670°C에서 공융이 일어날 수 있다고 가정하였다. 이에 따라 공융이 피복재 건전성에 미치는 영향을 전체적으로 평가하기 위하여 보수적으로 675 C에서의 공융침투율을 계산하였다.

그림 5는 기존 모델에 의한 피복재에서의 시간당 침투율을 나타낸다[3, 4]. 그림에서 보는 바와 같이 650°C에서 침투율은 시간당 0.018mm이며, 675°C 에서는 시간당 0.025mm이다.

이들 결과로 분석하면 피복재 두께가 0.55mm이기 때문에 650°C 에서는 약 30시간이면 100% 침투되며 대부분 액상이 될 것으로 판단된다. 또한 온도가 증가할수록 100% 침투되는 시간은 더욱 더 감소하게 된다.

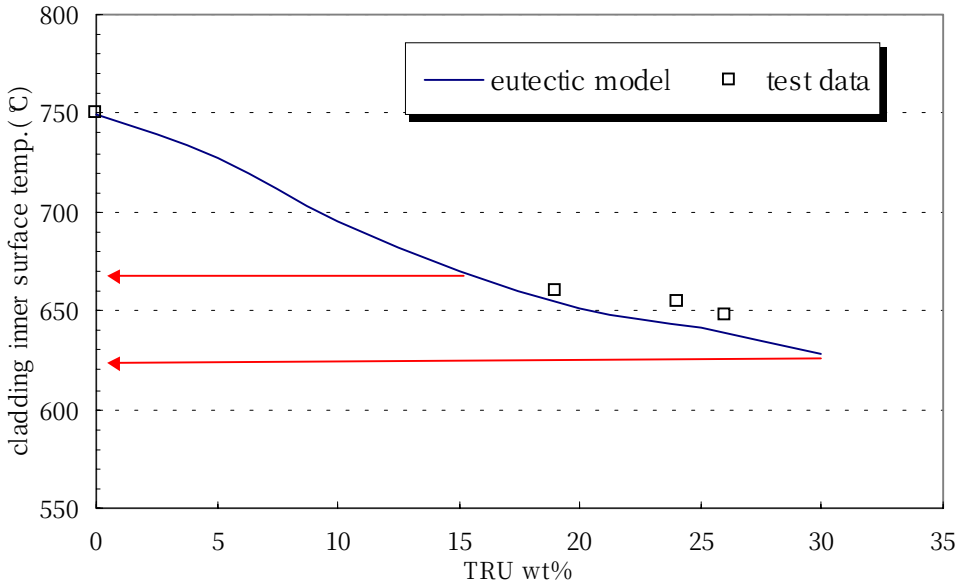

그림 4. TRU 함량에 따른 공융온도 유추

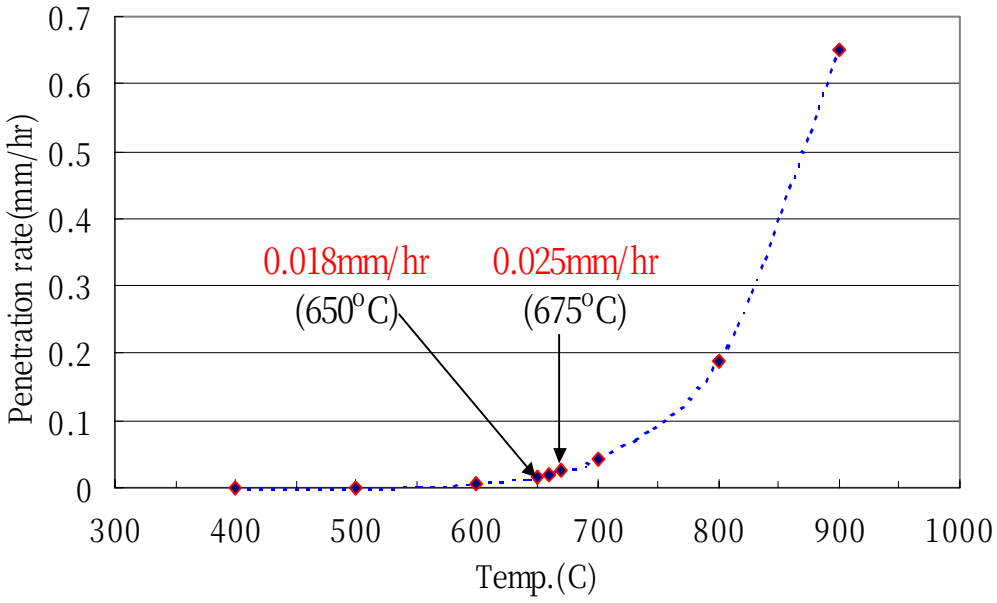

그림 5. Cladding penetration rate vs temperature

3. 공융침투 모델 보정

공융관련 설계기준은 피복관 두께의10%이상이 공정반응 등에 의해 감육되지 않아야 한다는 것이다. 따라서 기존 모델에 의한 분석에 따르면 650°C에서 3시간만에 10%이상이 감육된다고 분석되기 때문에 Zr liner와 같이 공융방지를 위한 피복재 개념 개선이 없이는 공융관련 설계기준을 만족시킬 수 없게 된다.

그러나 연소도에 따라서, 침투율은 차이가 나타나는 것으로 분석되고 있다. 그림 6은 연소도에 따른 공융추세를 나타낸다[3, 4].

그림에서 보는 바와 같이 고연소도에 공융을 일으키는threshold temp.는 감소하지만 penetration rate도 감소하며, 연소도가 낮으면 반대현상이 발생한다. 즉 고연소인 경우, 공정반응층은 보다 낮은 온도에서 형성되기 시작하지만 공정반응층 침투율의 활성화 에너지(activation energy)는 연소도가 5.6at.%인 연료에 비해 연소도가 11at.%인 연료가 더 낮은 것으로 나타났으며, 그림에서 보듯이 온도 유지시간이 증가할수록 공정반응층 침투기울기는 감소하였다. 한편 연소도가 낮으면 공융된 부분이 액상으로 변하는 비율도 적게 나오는 것으로 분석된다.

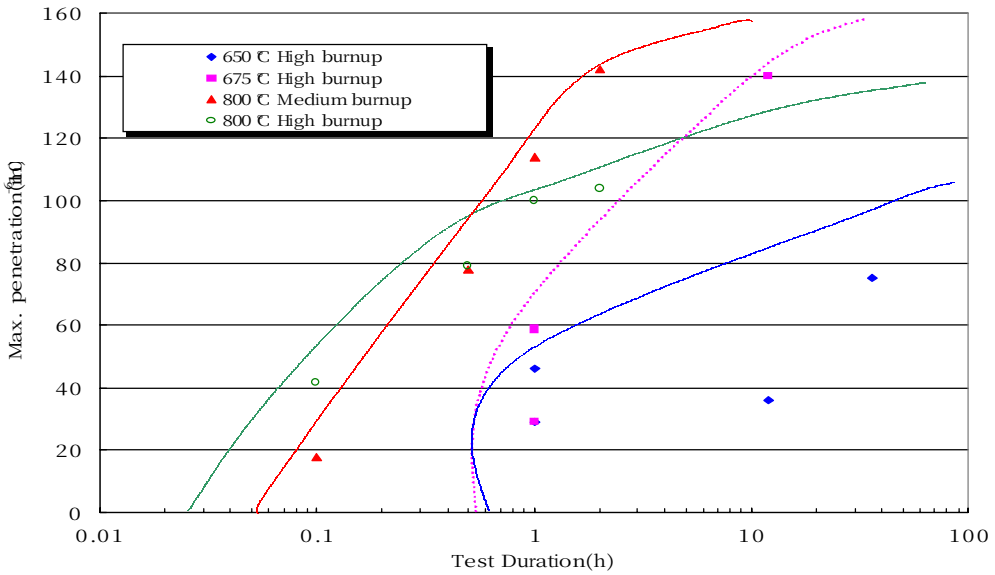

그림 6. 연소도 및 온도에 따른 공융 추세

그림 7은 800°C에서의 침투율 모델 및 실험데이터를 나타낸다.

기존 모델에 의하면 선형적인 증가가 예상되지만, 실험데이터상에서는 평형치를 나타낸다는 것을 알 수 있다. 연소도가 증가할수록 활성화 에너지가 감소하여 그래

프상의 기울기가 줄어드는 것을 알 수 있다.

이런 영향 때문에 고온으로 갈수록 저연소도의 공정반응층 침투율이 현저하게 증가하여 고연소도의 침투율을 넘어서게 된다.

이는 연소도가 증가할수록 피복관으로 확산 가능한 란타나이드 핵분열 생성물이 많아지는 점과 연료심과 피복관 경계면에서 생성된 기체 버블(gas bubble)과 precipitate를 이루는 핵분열 생성물이 확산을 억제하는 것 사이의 상호 관련성에 기인한 것으로 분석된다.

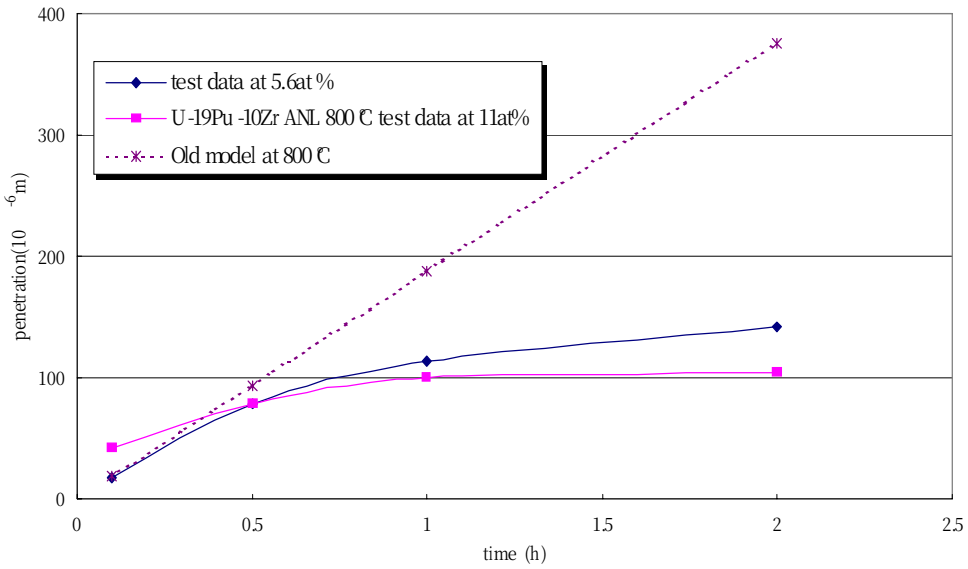

그림 7. Cladding penetration vs time at 800°C

그림 7에 나타난 바와 같이 기존 침투모델은 실질적인 거동에 비해서 너무 보수적으로 도출되어 있다는 것을 알 수 있다. 따라서 본 보고서에서는 기존 침투 모델의 보수성을 보정하기 위하여 실험데이터에 근거한 침투율 기울기를 도출하였다.

그림 8은 침투율 기울기가 보정된 시간 및 온도에 따른 침투율을 나타낸다. 그림에서 보는 바와 같이 기존 모델에서는 800 C 및 2시간이면 360μm 감육되었으며, 그 이후 침투율은 무한대에 이르게 된다. 그러나 실험데이터에 따르면 800 C 및 2시간에 100μm 감육되며, 침투율이 시간에 따라 평형을 이룬다는 것을 알 수 있기 때문에, 이에 따라 시간에 따른 침투율을 다음과 같이 보정하였다.

$$Y\ (\mu m) = 0.1461\ t^{0.1139} * T \qquad (1)$$

여기서 t는 시간 (h), T는 온도 (C)이다.

냉각재 출구온도가 530 C가 고려되고 있으므로, 피복관 중간온도가 보수적으로 약 592 C 인 경우 2σ를 고려하여, 피복관 내면온도는 보수적으로 약 675 C 까지 올라갈 수 있다고 가정하였다.

이 경우 개선된 모델에 의해 675 C 및 54개월후의 침투 깊이를 계산하면, 약 360 μm정도가 된다.

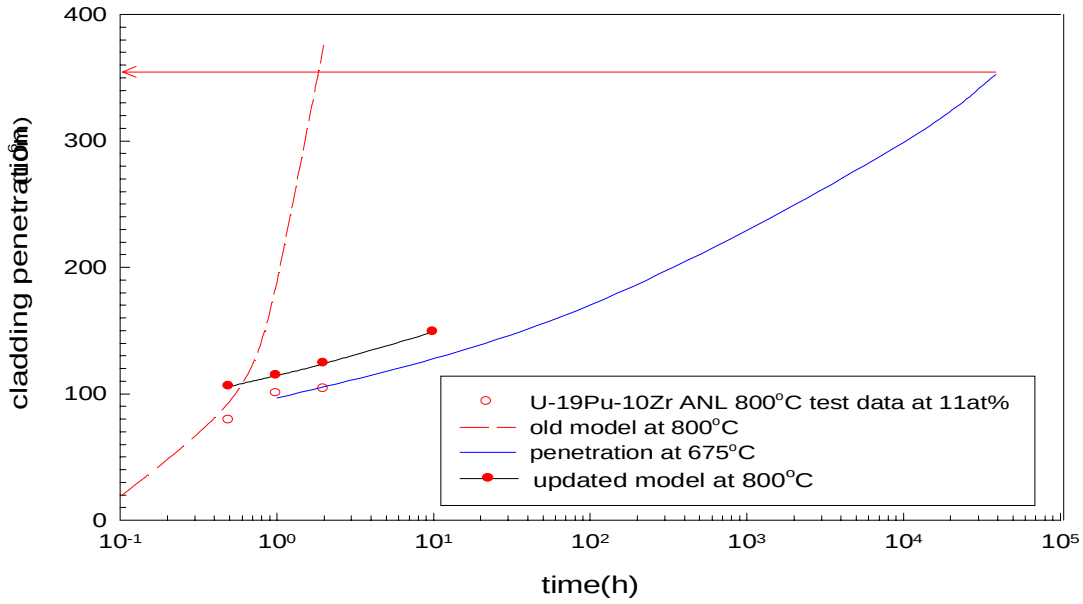

그림 8. 개선된 모델에 의한 시간 및 온도에 따른 침투율

4. 개선된 모델에 의한 피복관 건전성 분석

피복재 공정반응에 의한 설계제한치는 운전기간동안 피복재 감육이 10% 이하이어야 한다는 것이다. 이에 따라 피복관 내면온도가 약 675^{0}C인 경우에는 피복관의 두께는 3.6mm이상이어야 공정반응에 의한 설계제한치는 만족할 수 있다는 것을 알 수 있다.

그러나 설계기준이 피복재 감육 10%이하로 설정된 것은, 일단 공융이 시작되면 감육율이 급격히 증가한다는 가정에 의한 것이었다. 즉 기존의 모델에서 보는 바와 같이 1~2시간이 넘어가면 침투율은 거의 무한대로 증가한다는 가정을 기본으로 하고 있다. 그러나 개선된 모델에 의하면 침투율은 시간에 따라 무한대로 증가하지 않고 어느 정도에서 평형을 이루게 된다.

또한 기존의 실험결과에 의하면 약 1~2at% 연소도에 이르면 핵분열기체

분포가 급격한 방출을 보이고, 연료심과 피복관의 접촉이 발생하기 때문에 기체 bubble이 확산을 저지한다는 가정을 하면, 연소초기에도 새로이 도출된 방정식을 응용할 수 있을 것이다.

방정식 (1)을 이용하여 온도와 시간에 따른 공정반응 감육율을 표시하면 그림 9와 같다. 그림에 나타난 바와 같이 초기에는 침투율이 급격히 증가하지만 그 이후에는 평형을 보이게 된다.

또한 연료봉 설계시 피복관의 두께를 보수적으로 두껍게 하고 있기 때문에 이들 감육율이 변형율에 관계가 얼마나 영향을 미치는 가에 대한 고찰이 필요하다.

피복재의 두께가 얇아진다는 것은 피복재 강도에 영향을 미치기 때문에 정상운전시에 공정반응에 의해 피복재가 계속적으로 방정식 (1)과 같이 감육되고 있다는 전제하에, 피복재 변형율을 분석하였다.

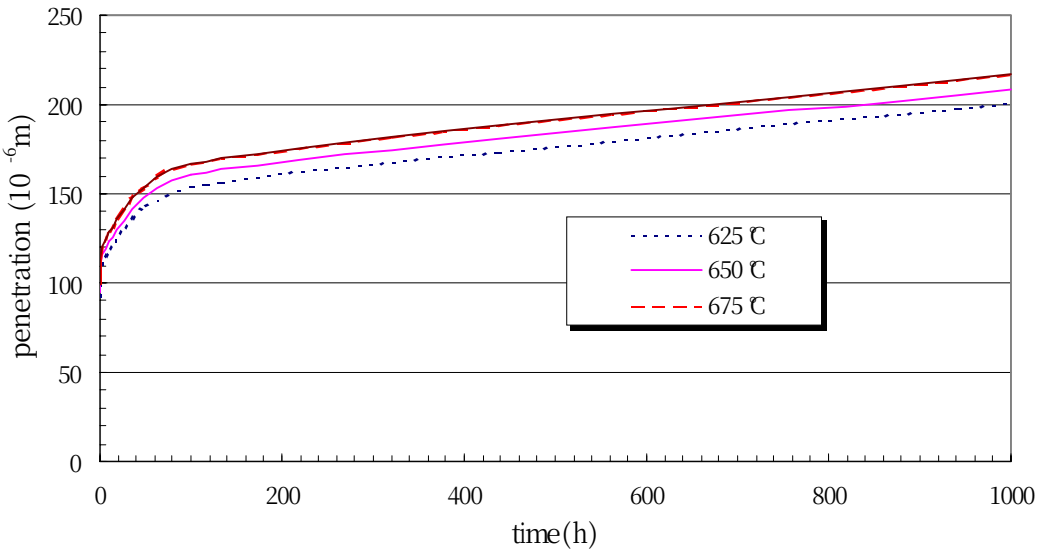

그림 9. 시간 및 온도에 따른 침투율

그림 10은 공정반응이 고려되지 않은 경우의 피복재 변형율과 공정반응에 의해 피복재 두께가 점점 감소하는 경우에 대한 변형율을 비교한 것이다. 정상시의 피복관 내면 최대온도는 570^0C 이었으며, 보수적으로 공정반응을 고려할 시에는 최대온도가 약 625^0C 정도 된다고 가정하였다.

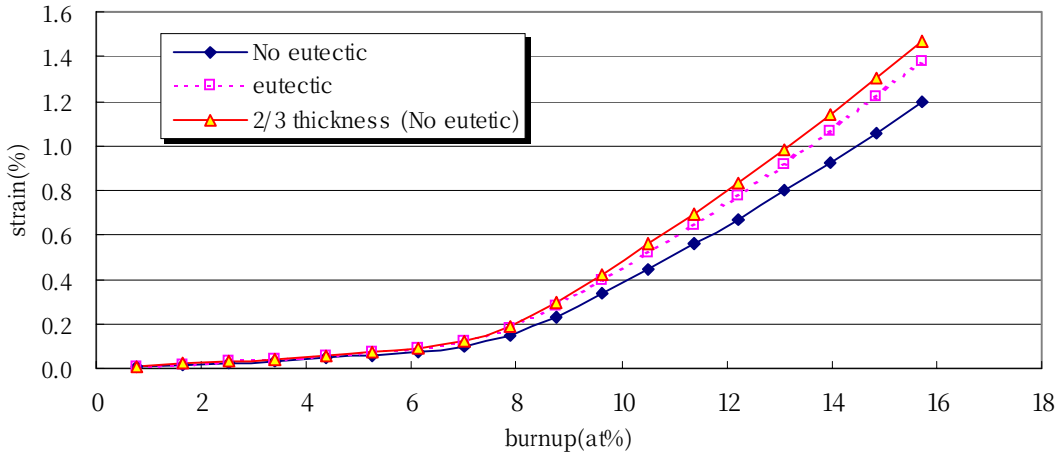

그림 10. 침투율을 고려한 경우의 피복관 건전성 비교

침투율을 고려한 경우의 변형율이 약 0.2%정도 더 크게 나타나고 있다. 이는 피복관 두께의 감소효과때문이므로, 실제적으로 피복관 두께에 의한 변형율 크기 변화를 비교하였다.

현재 피복관 두께의 약 2/3 정도의 두께를 가진 연료봉에 대해서 공융이 일어나지 않았다는 가정하에 변형율을 비교한 결과, 유사한 결과를 얻게 되었다.

5. 결론

KALIMER 핵연료로 고려되고 있는 U-TRU-Zr 합금형 연료의 주요 현안이 되고 있는 연료심과 피복관간의 공융현상을 분석하였다. 기존의 공융모델 및 실험자료를 분석한 결과 기존의 모델은 너무 보수적인 것으로 나타났으며, 연소도에 따른 공융침투율의 변화를 모사하지 못하고 있는 것으로 나타났다. 이에 따라 본 논문에서는 실험자료를 기반으로 합금의 조성별로 공융을 일으킬 수 있는 온도를 유추하였으며, 또한 연소도에 따른 공융침투율 효과를 고려하여 새로운 공융침투모델을 도입하였다. 개선된 공융침투모델에 의하여 피복관의 건전성을 평가한 결과, 기존의 보수적인 모델과는 달리 어느 정도의 공융은 허용할 수 있는 것으로 나타났다.

즉 기존 모델에서는 공융에 의해 급격이 피복관이 파손되었지만, 실험결과 및 새로운 모델에 의하면 공융이 발생하더라도 피복관의 급격한 파손은 발생하지 않는다는 것으로 나타났다. 그러나 이는 실험결과를 토대로 검증이 필요하며, 또한 현재까지 설정되어 있는 설계기준에 대한 재고찰이 필요한 것으로 평가된다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력중장기 연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

[1] T.B. Massalskibinary, Alloys Phase Diagram, American Society for Metals

[2] M. Kurata et al., "Thermodynamic evaluation of the quaternary U-Pu-Zr-Fe system- assessment of cladding temperature limits of metallic fuel in a fast reactor", Journal of Nuclear Material, 294 (2001) 123-129

[3] H. Tsai, "Fuel/Cladding Compatibility in Irradiated Metallic Fuel Pins at Elevated Temperatures", Proc. of 1990 Int. Fast Reactor Safety Meeting, Vol II, Snowbird, 1990

[4] A. B. Cohen et al, "Fuel/Cladding Compatibility in U-19Pu-10Zr/HT9 Clad Fuel at Elevated Temperatures", Journal of Nuclear Materials, 204, 244-251p, 1993