

지르코늄-우라늄 금속 핵연료의 제원 변화에 대한 모델링

Modeling for Dimensional Changes in Zr-U Metallic Fuel

구양현, 이병호, 천진식, 오제용, 임정식, 손동성

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

요약

심재가 지르코늄(Zr)과 우라늄(U)의 합금이고 피복재가 Zr-1Nb인 금속 핵연료의 연소에 따른 제원 변화를 기술하는 모델을 개발하였다. 연소가 진행됨에 따라 발생하는 핵연료의 각종 제원 변화에 대한 모델은 금속 핵연료의 노내 성능을 분석하고 설계할 때 기본적으로 요구되므로, 본 논문은 조사시험 자료를 이용하여 금속 핵연료의 연소도에 따른 심재의 부피 변화, 심재의 단면적 변화, 그리고 핵연료봉의 길이 변화를 예측하는 모델을 개발하였다.

ABSTRACT

Zr-U metallic fuel that is composed of Zr-1Nb clad and fuel meat - a binary alloy of Zr and U - is being developed in KAERI. Since dimensional changes in fuel is required as a function of burnup for fuel design and performance analysis, based on measured data for irradiated metallic fuel rods whose characteristics are similar to those of KAERI's, models for changes in fuel meat volume, fuel meat cross-sectional area and fuel length have been developed.

1. 서론

우라늄과 열전도도가 좋은 금속의 혼합물로 제조되는 금속 핵연료는 산화물 핵연료보다 높은 열전도도를 가지므로 운전 시에 산화물 핵연료보다 온도 구배가 작고 축적되는 열량이 작다는 특성을 가진다. 이에 따라 운전 여유도가 향상되고 냉각재 상실사고 등의 사고가 발생하는 경우에는 원자로의 안전성이 향상되는 장점이 있다. 지금까지 개발된 금속 핵연료는 우라늄과 대개 다른 한 종류의 금속을 혼합하여 제조하는 이원계 합금이 주종을 이룬다. 우라늄과 혼합되는 금속의 종류는 사용되는 조건에 따라 Zr, Al, Mo 등이 있다.

한국 원자력연구소는 현재 심재가 지르코늄(Zr)과 우라늄(U)의 합금이고 피복재가 Zr-1Nb인 금속 핵연료 - 이하에서는 Zr-U 금속 핵연료로 칭함 - 의 제조기술을 개발하고 있다. 이 핵연료를 원자로에 사용하기 위해서는 제조기술 뿐만 아니라 이에 상응하는 설계기술도 개발해야 한다. 특히 연소가 진행됨에 따라 발생하는 핵연료의 각종 제원 변화에 대한 모델은 금속 핵연료의 노내 성능을 분석하고 설계할 때 기본적으로 요구된다. 이에 따라 본 논문에서는 조사 시험 후 측정된 자료를 바탕으로 Zr-U 금속 핵연료의 연소도에 따른 심재의 부피 변화, 심재의 단면적 변화, 그리고 핵연료봉의 길이 변화를 예측하는 모델을 개발한다.

## 2. 금속 핵연료 제원 변화

우라늄의 핵분열에 의해 생성되는 핵분열 생성물의 밀도는 우라늄의 밀도보다 작기 때문에 연소도가 증가함에 따라 핵연료 심재의 밀도가 작아져서 결과적으로 심재의 부피가 증가한다. 그리고 그림 1에서와 같이 현재 국내에서 개발하고 있는 Zr-U 금속 핵연료는 산화물 핵연료와는 달리 단면이 정사각형이며 네 모서리에 Self-spacing 및 냉각 효율을 증가시키기 위한 핀이 가미된 형상을 가진다. 또한 심재와 피복재가 재료적으로 접합된 상태로 제조되므로 둘 사이에 갭이 존재하지 않는다는 특징을 가진다.

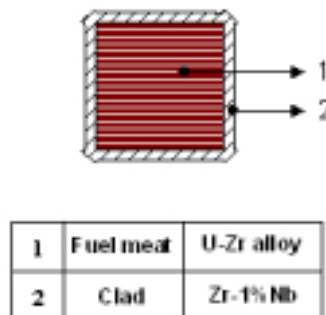


그림 1. Zr-U 금속 핵연료의 단면적 개략도.

연소에 따라 누적되는 핵분열 생성물에 의한 심재의 부피 증가(팽윤)는 곧 바로 피복재를 변형시키는 요소로 작용한다. 또한 핵분열 생성물에 의해 금속 핵연료의 심재 부피가 증가하면 핵연료의 단면적도 증가하여 냉각수 유로가 감소하므로 핵연료의 열수력적 거동을 분석할 때 단면적 감소에 대한 모델이 필요하다. 그리고 피복재로 사용되는 Zr-1Nb는 중성자 조사를 받음에 따라 성장하고 이와 동시에 심재의 팽윤도 길이 증가에 기여하므로 핵연료 집합체 설계 시에 핵연료의 길이 증가를 고려해야 한다.

금속 핵연료의 심재 부피, 단면적 그리고 길이 증가에 대한 모델을 개발하려면 조사 전후의 핵연료의 제원 변화에 대한 자료가 요구된다. 현재 국내에는 금속 핵연료에 대한 조사 자료가 충분하게 존재하지 않으므로, 금속 핵연료의 제원 변화에 대한 모델을 개발하고 제원 안정성을 평가하기 위해, 금속 핵연료에 대해 많은 조사경험을 보유하고 있는 국가로부터 금속 핵연료의 조사 자료를 입수하고 이를 제원 변화에 대한 모델을 개발하는데 활용하였다.

### 3. 핵분열 생성물에 의한 심재 팽윤 모델

핵연료 심재의 부피 증가 즉 팽윤은 핵분열 생성물의 양에 비례할 것이므로 결과적으로 연소도에 비례한다. 이에 따라 심재 팽윤은 연소도에 비례한다는 가정을 사용하면 심재의 팽윤은 다음과 같이 표현된다:

$$P = CB, \quad (1)$$

윗 식에서,

$P$  : 심재 팽윤에 대한 예측치 (%),

$C$  : 단위 연소도 당 심재 팽윤율 (%/  $g/cm^3$ ),

$B$  : 핵연료봉 평균 연소도 ( $g/cm^3$ ).

본 논문은 측정 값을 이용하여 심재 팽윤에 대한 모델 상수 - 단위 연소도 당의 심재 부피 증가율 -  $C$ 를 유도한다. 설계에 사용하는 모델 상수는 설계 방법론 및 그 용도에 따라 크게 두 가지로 나눌 수 있다. 하나는 핵연료의 평균적인 거동을 예측하는데 사용하는 평균 (최적) 모델 상수인  $C_{avg}$ 이고, 다른 하나는 거동을 보수적인 관점에서 통계적으로 분석할 때 사용하는 95/95 모델 상수인  $C_{95/95}$ 이다. 95/95 모델 상수는 이 값을 이용하여 예측한 팽윤 값과 측정된 팽윤 값을 비교할 경우, 95 %의 신뢰도에서 예측한 팽윤 값이 전체의 95 %에 해당하는 자료에 대해 측정된 팽윤 값보다 커지도록 (보수적이 되도록) 하는 상수이다.

측정 자료로부터 심재 팽윤에 대한 평균 모델 상수  $C_{avg}$  및 95/95 모델 상수  $C_{95/95}$ 를 유도하기 위해 사용한 식은 다음과 같다:

$$\left(\frac{P}{M}\right)_{95/95} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{P_i}{M_i} + k_{(95/95)} \cdot \sigma_{P/M}, \quad (2)$$

윗 식에서

$P_i$  :  $i$  번째 심재 팽윤에 대한 예측치,

$M_i$  :  $i$  번째 심재 팽윤에 대한 측정치,

$N$  : 측정된 심재 팽윤 자료의 총 개수,

- $\left(\frac{P}{M}\right)_{95/95}$  : 95 %의 신뢰도에서 총 자료의 95 %를 보수적인 방향으로 포함하는 예측치/측정치 비,  
 $k_{(95/95)}$  : 95 %의 신뢰도에서 총 자료의 95 %를 보수적인 방향으로 예측하는 통계 상수,  
 $\sigma_{P/M}$ : 각 자료에 대한 예측치/측정치 비의 표준편차.

첫째, 각 측정 자료에 대한 예측치/측정치 비의 평균값인  $\sum_{i=1}^N (P_i/M_i)/N$ 가 1.0이 되도록 하는  $C_{avg}$ 를 찾는다. 현재 확보된 팽윤에 관한 자료에 대해  $C_{avg}$ 를 22.7 %/g/cm<sup>3</sup>로 삼는 경우 예측치/측정치 비의 평균값이 1.0이 된다. 그런데 여기에서 심재의 단위 연소도 당 평균 팽윤률  $C_{avg}$ 이 전체 측정 자료에 대한 단순한 평균 팽윤률과는 다르다는 점에 유의해야 한다. 단순한 평균 팽윤률을 사용할 경우에는 예측치/측정치 비의 평균값이 1.0이 아닌 값이 도출되어 적절하지 않은 95/95 모델 상수  $C_{95/95}$ 를 낼 수 있다. 즉 단순한 평균 팽윤률을 사용하여 예측치/측정치 비의 평균값인  $\sum_{i=1}^N (P_i/M_i)/N$ 를 계산하면 이 값이 1.0에서 크게 벗어날 가능성이 존재하며 따라서 이로부터 유도된 95/95 모델 상수는 지나치게 덜 보수적이거나 혹은 이와 반대로 필요 이상으로 보수적일 가능성이 있기 때문이다.

둘째, 평균 팽윤률  $C_{avg}$ 를 이용하여 전체 자료에 대한 예측치/측정치 비의 표준편차인  $\sigma_{P/M}$ 를 구한다. 평균 팽윤률 22.7 %/g/cm<sup>3</sup>을 사용하는 경우 측정 자료에 대한 예측치/측정치 비의 표준편차는 0.444 이다.

셋째, 심재 팽윤 자료에 대응되는 상수  $k_{95/95}$ 를 얻는다. 각 자료에 대한 팽윤률이 정규 분포를 가진다고 가정하는 경우 팽윤 자료에 대한  $k_{95/95}$ 는 1.728 이다 [1]. 그러므로

$$\left(\frac{P}{M}\right)_{95/95} = 1.0 + 1.728 \cdot 0.444 = 1.767, \quad (3)$$

가 된다.

윗 식은 총 자료 개수의 95 %에 대해서는 예측치/측정치 비가 1.767보다 작고 나머지 5 %에 대해서는 예측치/측정치 비가 1.767보다 크다는 의미를 나타낸다. 그런데 예측치/측정치 비를 1.0으로 만드는 단위 연소도 당의 팽윤률이 22.7 %/g/cm<sup>3</sup>이므로 예측치/측정치 비를 1.767이 되게 하는 팽윤률  $C_{95/95}$ 은 40.1 %/g/cm<sup>3</sup> (22.7 %/g/cm<sup>3</sup> x 1.767)이 된다. 실제로 이 값을 사용하여 예측치/측정치 비를 계산하면, 총 측정 자료의 96.7 %에 해당하는 예측치/측정치 비가 1.0보다 크므로 40.1 %/g/cm<sup>3</sup>인  $C_{95/95}$ 가 타당한 값을 알 수 있다. 다시 말하면  $C_{95/95}$ 를 사용하여 심재 팽윤을 예측하는

경우 전체 자료의 95 %에 대해서는 예측치가 측정치보다 크다는 의미이다. 그러므로  $C_{95/95}$ 는 당초 이 상수를 유도하기 전에 제시했던 “95 %의 신뢰도에서 예측한 팽윤 값이 전체의 95 %에 해당하는 자료에 대해 측정된 팽윤 값보다 커지도록 (보수적이 되도록) 하는 상수”라는 전제를 만족한다.

그림 2는 측정된 심재 팽윤율과  $C_{avg}$  및  $C_{95/95}$ 를 사용하여 계산한 팽윤율을 비교하고 있다.  $C_{avg}$ 를 사용하는 경우 측정 값의 평균 거동을 잘 재현하고 있으며  $C_{95/95}$ 를 이용하는 경우에는 96.7 %의 자료에 대해서 예측치가 측정치보다 크게 나타난다.

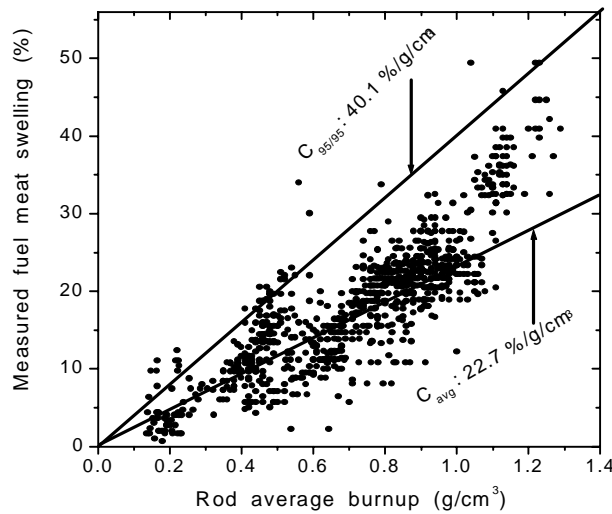


그림 2. 팽윤에 의한 핵연료 심재 부피 증가율.

#### 4. 핵연료 심재 단면적 증가 모델

핵분열 생성물에 의해 심재 부피가 증가하면 심재의 단면적이 증가하고 이에 따라 핵연료 단면적도 커져서 냉각수 유로가 감소하므로, 핵연료의 열수력적 거동을 분석할 때 이를 고려해야 한다. 심재 팽윤과 마찬가지로 심재의 단면적도 연소도에 비례하여 증가한다고 가정하면 단면적 증가율은 다음과 같이 표현된다:

$$P = CB, \tag{4}$$

윗 식에서,

- $P$  : 심재 단면적 증가에 대한 예측치 (%) ,
- $C$  : 단위 연소도 당 심재 단면적 증가율 (%/  $g/cm^3$ ),
- $B$  : 심재 단면적 평균 연소도 ( $g/cm^3$ ).

심재 단면적 증가에 대한 자료를 이용하여 심재 단면적 증가에 대한 두 종류의 상수인 평균 모델 상수  $C_{avg}$  및 95/95 모델 상수  $C_{95/95}$ 를 유도하였다. 상수 유도 절차는 심재 팽윤율을 구할 때 사용한 절차와 동일하다.

측정 자료에 대한 예측치/측정치 비의 평균값이 1.0이 되도록 하는  $C_{avg}$ 를 찾은 결과  $C_{avg}$ 는 24.8 %/g/cm<sup>3</sup>이며, 예측치/측정치 비의 표준편차는 0.204이다. 그리고 심재 단면적 증가에 대한 측정 자료에 대응되는 상수  $k_{95/95}$ 는 2.008이므로 [1],

$$\left(\frac{P}{M}\right)_{95/95} = 1.0 + 2.008 \cdot 0.204 = 1.410, \quad (5)$$

이다. 따라서 95 %의 신뢰도에서 보수적인 방향으로 95 %의 측정 자료를 포함하는 심재 단면적 증가율  $C_{95/95}$ 는 35.0 %/g/cm<sup>3</sup> (24.8 %/g/cm<sup>3</sup> x 1.410)이 된다. 이 값을 사용하여 예측치/측정치 비를 계산하면, 총 측정 자료의 92.2 %에 해당하는 예측치/측정치 비가 1.0보다 크므로 35.0 %/g/cm<sup>3</sup>인  $C_{95/95}$ 가 타당한 값을 알 수 있다.

그림 3은 측정치와 예측치를 비교하고 있다. 조사에 의한 피복재의 부피 변화가 없고 심재의 팽윤이 길이 방향이 아닌 단면 방향으로만 일어나며 또한 핵연료의 길이 방향으로 연소도가 균일하다고 가정하면, 심재의 평균 부피 증가율이나 심재의 평균

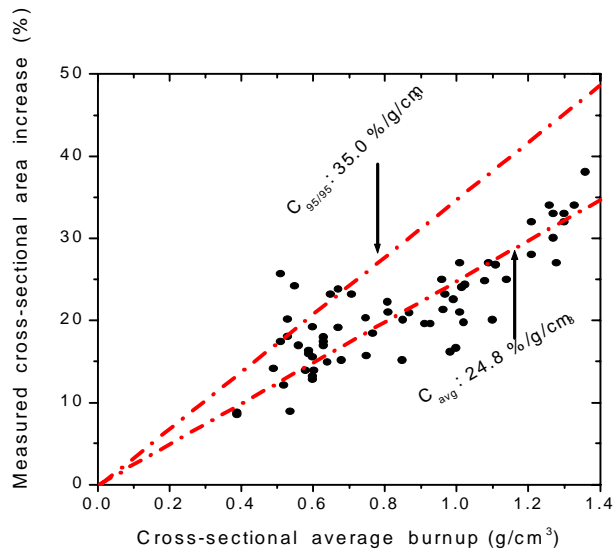


그림 3. 팽윤에 의한 핵연료 심재의 단면적 증가율.

단면적 증가율은 동일해야 한다. 그러나 이 두 값은 각각 22.7 %/g/cm<sup>3</sup> 및 24.8 %/g/cm<sup>3</sup>으로서 심재의 평균 단면적 증가율이 2.1 %/g/cm<sup>3</sup> 만큼 크다. 만약 단면적

증가율을 측정된 부위의 연소도가 핵연료의 평균 연소도보다 높았다면 이 표본에서 얻은 단면적 평균 증가율은 부피의 평균 증가율보다 높게 나타날 것이고, 반대로 평균 연소도보다 낮은 위치에서 자료를 얻었다면 단면적 평균 증가율은 부피의 평균 증가율보다 낮게 유도될 것이다. 따라서 본 경우에는 자료의 대부분이 단면적 연소도가 핵연료 평균 연소도보다 상대적으로 높은 곳에서 측정되었다고 판단된다.

## 5. 핵연료 길이 증가 모델

금속 핵연료의 피복재로 사용되는 Zr-1Nb는 중성자 조사를 받음에 따라 성장하고 동시에 심재의 팽윤도 길이 증가에 기여하므로, 금속 핵연료는 연소에 따라 길이가 늘어나게 된다.

경수로 핵연료의 피복관으로 사용되는 Zircaloy-4의 조사 성장은 속 중성자 fluence 즉 연소도의 지수 승에 비례한다고 가정한다 [2]. 경수로 핵연료에서는 소결체와 피복관 사이에 갭이 존재하므로, 연소도가 아주 높아 소결체와 피복관이 기계적으로 아주 강하게 밀착되어 있거나 혹은 둘이 화학적 결합되어 있는 경우를 제외하고는, 피복관이 축 방향으로 자유롭게 조사 성장을 할 수 있다. 반면 금속 핵연료의 피복재는 심재와 재료적으로 결합되어 있으므로 조사 성장이 자유롭지 못하므로 피복재의 길이 증가와 핵연료의 길이 증가가 거의 동일하다는 점에 유의해야 한다.

일반적으로 Zr 합금의 조사 성장 비율은 속 중성자 fluence 즉 연소도( $g/cm^3$ )의 지수 승에 비례한다고 가정하여 다음 식으로 표현할 수 있다:

$$P = CB^n, \quad (6)$$

위 식에서,

$P$  : 핵연료 길이 증가에 대한 예측치 (%),

$C$  : 핵연료 길이 증가 모델 상수 (%),

$B$  : 핵연료 평균 연소도 ( $g/cm^3$ ),

$n$  : 지수.

심재 팽윤 및 단면적 증가 모델 상수를 구할 때 적용한 절차를 이용하여 길이 증가에 대한 두 종류의 상수인 평균 모델 상수  $C_{avg}$  및 95/95 모델 상수  $C_{95/95}$ 를 유도하였다. 길이 증가 모델에 대한 상수를 구하는 구체적인 절차는 다음과 같다.

첫째, 측정 자료의 평균 거동을 적절하게 모사하는  $n$ 을 구한다. 길이 증가에 대한 자료의 평균 거동을 잘 예측하는  $n$ 은 0.9로 나타났다.

둘째, 이  $n$ 을 이용하여 길이 증가에 대한 측정 자료의 예측치/측정치 비를 계산하여 이 비의 평균값이 1.0이 되게 하는  $C$  즉  $C_{avg}$ 는  $0.41 \text{ \%}/(\text{g}/\text{cm}^3)^{0.9}$  이고 예측치/측정치 비의 표준편차는 0.964 이다. 그리고 측정 자료에 대응되는 상수  $k_{95/95}$ 는 1.738이므로 [1],

$$\left(\frac{P}{M}\right)_{95/95} = 1.0 + 1.738 \cdot 0.964 = 2.675, \quad (7)$$

이다. 따라서 95 %의 신뢰도에서 보수적인 방향으로 95 %의 측정 자료를 포함하는 심재 단면적 증가율  $C_{95/95}$ 는  $1.10 \text{ \%}/(\text{g}/\text{cm}^3)^{0.9}$  ( $0.41 \text{ \%}/\text{g}/\text{cm}^3 \times 2.675$ )가 된다. 이 값을 사용하여 예측치/측정치 비를 계산하면, 총 측정 자료의 96.4 %에 해당하는 예측치/측정치 비가 1.0보다 크므로  $1.10 \text{ \%}/(\text{g}/\text{cm}^3)^{0.9}$ 인  $C_{95/95}$ 가 타당한 값을 알 수 있다.

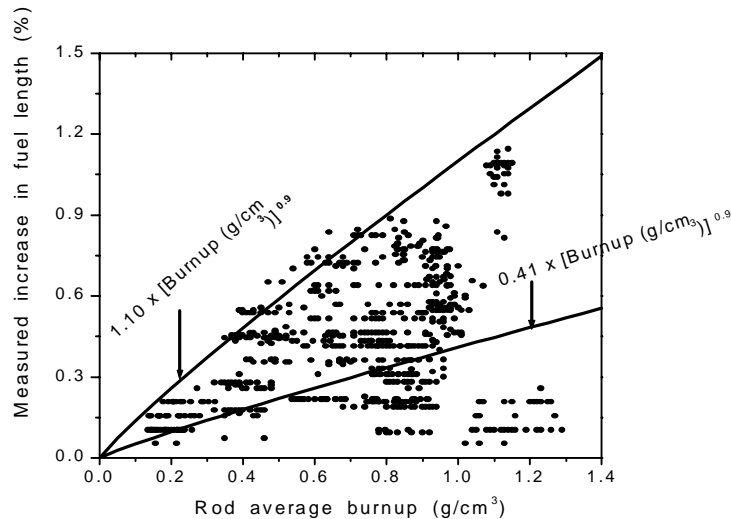


그림 4. 핵연료의 길이 증가율.

그림 4는  $C_{avg}$ 과  $C_{95/95}$ 을 식 (6)에 대입하여 계산한 결과와 측정 값을 비교하고 있으며 계산한 두 값이 측정 값을 잘 모사하고 있음을 알 수 있다.

## 6. 요약

한국 원자력연구소는 현재 심재가 지르코늄(Zr)과 우라늄(U)의 합금이고 피복재가 Zr-1Nb인 금속 핵연료를 개발하고 있다. 연소가 진행됨에 따라 발생하는 핵연료의 각종 제원 변화에 대한 모델은 금속 핵연료의 노내 성능을 분석하고 설계할 때 기본적으로 요구되므로 금속 핵연료의 연소도에 따른 심재의 부피 변화, 심재의 단면적 변화, 그리고 핵연료봉의 길이 변화를 예측하는 모델을 개발하였다.



본 논문은 측정 값을 이용하여 상기한 세 제원 변화에 대한 모델 및 모델 상수를 유도하였다: 하나는 핵연료의 평균적인 거동을 예측하는데 사용하는 평균 (최적) 모델 상수인  $C_{avg}$ 이고, 다른 하나는 거동을 보수적인 관점에서 통계적으로 분석할 때 사용하는 95/95 모델 상수인  $C_{avg}$ 이다.

### 감사의 글

본 논문은 과학기술부가 후원하는 중장기 원자력 연구개발 과제의 일환으로 작성되었습니다.

### 참고문헌

- [1] D.B Owen, "Factors for one-sided tolerance limits and for variables sampling plans", SCR-607, March 1963.
- [2] MATPRO-Version 11 (Revision 2), NUREG/CR-0497, US NRC, August 1981.