'95 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

UO_2 핵연료 및 혼합핵연료의 노내거동 비교

구양현, 이병호, 손동성
한국원자력연구소

요 약

장차 우리나라에서 미래형 핵연료의 한 종류로서 사용될 가능성이 있는 경수로용 혼합핵연료가 기존의 UO_2 핵연료와 노내거동에서 어떤 차이를 야기시키는 가를 물리적 성질변화 및 반경방향 출력변화의 관점에서 예비적으로 분석하였다. 분석 결과 혼합핵연료는 UO_2 핵연료에 비해 (1) 열전도도가 작아 핵연료 온도가 높았고 (2) 증가된 핵연료 온도로 인해 핵분열기체 방출률도 증가하여 핵연료봉 내압의 관점에서는 불리하였으나 (3) 증가된 핵연료 내압으로 인해 냉각수 압력과 핵연료봉 내압의 차이가 감소하여 피복관 변형도가 감소하므로써, PCI 관점에서는 UO_2 핵연료에 비해 유리하였다.

1. 서 론

새로운 종류의 핵연료를 노심에 장전하여 연소시키기 위해서는 이 핵연료가 주어진 노심 조건하에서 일정한 기간동안 핵연료에 관한 설계기준을 만족하여 원자력 발전소 운전에 지장을 초래하지 않으면서 동시에 운전중 발생가능한 다양한 조건하에서 피복관이 손상되지 않음을 입증하여야 한다. 따라서 장차 우리나라에서 미래형 핵연료의 한 종류로서 사용될 가능성이 있는 경수로용 혼합핵연료가 기존의 UO_2 핵연료와 노내거동에서 어떤 차이를 야기시키는 가를 분석하고 궁극적으로는 혼합핵연료를 설계할 수 있는 기술을 확립해야 한다.

혼합핵연료는 기존의 UO_2 핵연료에 플루토늄 산화물이 첨가된 핵연료로서 열전도도, 용융온도, 열용량, 열팽창 계수등의 기본적인 물리적 성질이 UO_2 핵연료의 그것들과 다르며 또한 제조공정에 따라 핵연료 내의 플루토늄 분포의 균일정도, 플루토늄 덩어리의 크기, 기공분포, 결정입자 크기등 미세조직이 순수한 UO_2 핵연료와 차이가 발생한다. 또한 플루토늄이 첨가됨으로 반경방향의 출력분포가 달라진다. 따라서 혼합핵연료가 우라늄 핵연료와 동일한 조건하에서 연소된다고 할지라도 혼합핵연료는 노내에서 기존의 우라늄 핵연료와 다른 거동을 보인다. 그러므로 본 논문에서는 혼합핵연료에 대한 설계기술을 개발하는 첫 단계로서, 이러한 물리적 성질의 변화 및 반경방향 출력변화가 기존의 UO_2 핵연료와 비교하여 혼합핵연료의 노내거동에 어떤 차이를 야기시키는 가를 예비적으로 분석하고자 한다.

2. 물리적 성질 및 반경방향 출력분포

1) 열전도도 (thermal conductivity)

핵연료 노내거동 분석에 기본적으로 요구되면서 또한 가장 중요한 인자중의 하나인 온도분포를 계산하기 위해서는 정확한 열전도도 자료가 필요하다. 여기에서는 아래와 같은 UO_2 및 혼합핵연료에 대한 열전도도 [1] 를 이용하여 이 두 핵연료의 열전도도 차이를 평가하였다.

$$\lambda_{95} = \frac{1}{4.524\cdot10^{-2} + A\cdot x + 2.462\cdot10^{-4}\,T} + 5.473\cdot10^{-9}\,T^2 + 2.287\cdot10^{-14}\,T^4,$$

윗 식에서

$$A = \begin{bmatrix} 2.33 & \text{for } UO_{2+x} & 0.00 \le x \le 0.11 \\ 3.59 & \text{for } (U,Pu)O_{2-x} & 0.00 \le x \le 0.07 \end{bmatrix}$$

λ_{95} = thermal conductivity at 95% T.D. [W/m·K]

T = fuel temperature [K]
x = stoichiometry deviation

일반적으로 혼합핵연료는 제조시에 hypo-stoichiometric한 성질을 나타내므로, 혼합핵연료에 대한 열전도도를 계산하기 위해 본 논문에서는 x값으로서 0.01을 취하였다. 이 때 온도에 따른 열전도도가 그림 1에 도시되어 있는데 모든 온도범위에서 혼합핵연료의 열전도도가 UO_2의 열전도도보다 작음을 보여주고 있다. 그런데 정상운전시에 소결체의 표면 온도 (Ts) 가 일정하고 열전도도 k가 온도에 무관하게 일정하다고 가정하면 소결체 중심온도 (T_{CL}) 는 $T_{CL} = T_S + q'/4\pi k$ 로 계산된다 (여기에서 q' : 선형출력, k : 열전도도). 따라서 선형출력이 일정한 정상상태에서는 열전도도에 따라 소결체 중심온도 및 소결체 내의 반경방향 온도분포가 결정된다. 표면온도가 동일한 경우 소결체 내 온도증가량은 열전도도에 역비례한다. 그러므로 다른 조건이 동일하다고 가정할 경우, 열전도도가 작을수록 소결체 온도가 증가하므로 핵분열기체 방출의 측면에서는 불리함을 예상할 수 있다.

2) 열팽창계수 (thermal expansion)

열팽창계수는 핵연료 조사 기간중 소결체-피복관 접촉 (PCI) 및 핵연료 온도 관점에서 핵연료의 노내 거동에 영향을 미치는 인자이다. 왜냐하면 다른 조건이 동일할 경우, 소결체 내에서 같은 온도분포를 지니고 있더라도, 열팽창계수에 따라 팽창하는 소결체 반경방향의 길이가 달라지고 이는 갭 크기에 영향을 미쳐 결과적으로 갭에서의 열전달계수 및 과도상태시의 소결체-피복관 접촉정도가 이 열팽창계수에 의해 좌우될 수 있기 때문이다. MATPRO [2]에 따르면 UO_2 및 혼합핵연료의 열팽창계수는 아래와 같이 주어진다.

$$\varepsilon_T\,[\ (U_{1-a}Pu_a)O_2\ ] = [\ (1-\alpha)\,\varepsilon_T(UO_2) + \alpha\,\varepsilon_T(PuO_2)\ ]$$

윗 식에서

$$\varepsilon_T(UO_2) = \left(-3.000\cdot10^{-3} + 1.000\cdot10^{-5}\,T + 4.00\cdot10^{-2}\,e\left(-\frac{6.90\cdot10^{-20}}{1.38\cdot10^{-23}\,T}\right)\right)$$

$$\varepsilon_T((U,Pu)O_2) = \left(-2.700\cdot10^{-3} + 9.000\cdot10^{-6}\,T + 7.00\cdot10^{-2}\,e\left(-\frac{7.00\cdot10^{-20}}{1.38\cdot10^{-23}\,T}\right)\right)$$

α = weight fraction of PuO_2

그림 2는 UO_2 및 혼합핵연료에 대한 열팽창계수를 온도의 함수로 보여주고 있는데, 두 핵연료에서 열팽창계수는 가압경수로 운전 영역에서 거의 차이를 보이지 않는다.

3) 열용량 (specific heat capacity)

열용량은 핵연료의 단위질량당 단위온도당에 저장되는 열로서 특히 짧은 시간내에 출력이 급격하게 증가하는 반응도 사고 (RIA) 분석시에 요구되는 자료이다. 이런 유형의 사고가 발생하면 소결체에서 피복재를 통하여 냉각수로 전달되는 열량이 매우 작거나 거의 없으므로 이 때의 핵연료 거동은 주로 소결체의 열용량의 영향을 받는다. 열용량이 클수록 상기에 언급된 사고시 소결체 온도 증가에 기여할 수 있는 에너지가 많은 셈이어서 결과적으로 소결체 온도를 증가시켜 열팽창에 의한 피복관 파손 가능성을 증가시키는 반면, 열용량이 작을수록 소결체 온도가 작게 상승시키므로 핵연료 건전성 측면에서 유리하다. Beauvy와 Bonnerot는 혼합핵연료의 열용량을 혼합핵연료에서 PuO_2가 차지하는 질량비 및 stoichiometry deviation의 함수로 아래와 같이 나타내었다 [3].

$$c_p\,[\ (U_{1-a}Pu_a)O_{2-x}] = [\ (1-\alpha)\,c_p(UO_2) + \alpha\,c_p(PuO_2)] - 0.5x\,c_p(O_2)$$

윗 식에서

c_p = specific heat capacity at constant pressure [J/m.K]

$$= C_1 \frac{\theta^2}{T^2} \frac{e^{\theta/T}}{(e^{\theta/T}-1)^2} + C_2 T + C_3 e(-\frac{E_a}{k_B T})(1+\frac{E_a}{k_B T})$$

	c_1 [J/m·K]	θ [1/K]	c_2 [J/kg·K^2]	c_3 [J/kg·K]	k_B [J/K]	E_a [J]
UO_2	292	542	2.22×10^{-2}	3.48×10^{3}	1.38×10^{-23}	1.70×10^{-19}
PuO_2	324	587	2.96×10^{-2}	0.0	1.38×10^{-23}	4.80×10^{-19}

상기식을 온도에 대해 적분하면 상온에서 특정온도까지 핵연료의 단위질량에 저장되는 에너지가 계산되는데, 그림 3은 UO_2 및 혼합핵연료의 저장에너지를 온도의 함수로 도시하고 있다. 가압경수로의 일반적인 운전 조건하에서 소결체 온도 영역인 500~1500°C 에서 혼합핵연료는 UO2 핵연료에 비해 약간 작은 값을 보여주고 있다.

4) 반경방향 출력분포

UO_2 및 혼합핵연료의 가장 큰 차이점 중의 하나는 연소도에 따른 반경방향 출력분포이다. 혼합핵연료에는 약 3~5%의 플루토늄이 첨가되는데 여러가지의 플루토늄의 동위원소들 중에서 핵분열을 일으키는 핵종인 플루토늄 239 및 241의 열핵반응 단면적이 각각 740 σ_f 및 950 σ_f 로서 U-235의 열핵반응 단면적인 577 σ_f 보다 상당히 크다. 따라서 핵분열성 물질의 함량이 동일한 경우, UO_2 핵연료에서보다 혼합핵연료에서의 중성자 함몰현상이 현저하다. 본 논문에서는 UO_2 및 혼합핵연료에서 연소도 및 농축도에 따른 반경방향 출력분포를 계산하기 위한 프로그램인 DEPRESS [4]를 이용하여 이 두 핵연료에서의 반경방향 출력분포를 비교하였다. 두 핵연료에서의 중성자 함몰현상은, 그림 4에 도시된 바와 같이, UO_2 핵연료에 비해 플루토늄 원자가 혼합핵연료의 소결체 외각에 가장 많이 존재하는 연소초기에 가장 현저하게 나타난다. 그러나 연소가 진행됨에 따라 혼합핵연료에서는 플루토늄 원자가 소모되어 플루토늄의 함량이 감소하고, UO_2 핵연료에서는 U-238가 중성자를 흡수하여 플루토늄 241을 생성하여 플루토늄 함량이 증가하여, UO_2 및 혼합핵연료에서의 플루토늄 함량차이가 연소도에 따라 감소하므로 결과적으로 반경방향의 출력분포 차이도 또한 감소한다. 이 효과를 그림 5 및 6에서 볼 수 있다. 이 반경방향 출력분포의 차이는 다른 모든 조건이 동일한 경우에도 소결체에서의 온도분포에 차이를 발생시키므로 핵연료 노내거동에 영향을 미치는 매우 중요한 인자이다. 또한 이 인자는 반경방향의 연소도 분포 즉 핵분열 생성기체의 분포도 변화시키므로 핵분열기체 방출에도 영향을 미친다.

3. 노내거동

핵연료의 노내거동은 상호 영향을 주고받는 여러가지 현상의 복합적인 결과이므로, UO_2 및 혼합핵연료의 노내거동 차이를 분석하기 위해서는 물성 및 반경방향 출력분포 차이를 핵연료봉 분석용 코드에 입력시켜 계산한 결과를 비교·평가해야 한다. 본 논문에서는 핵연료봉 오내거동 분석용 전산코드를 이용하여 상기의 물리적 성질 및 반경방향 출력분포 차이를 수정한 후, 17x17 형태의 KOFA (KOrean Fuel Assembly)가 울진 1,2호기의 원자로에서 전 장전기간에 걸쳐 원자로의 평균 선형출력으로 연소할 때 두 핵연료의 노내거동을 비교·분석하였다.

1) 핵연료 평균온도

갭에서의 열전도도에 영향을 미치는 인자중의 하나인 갭 크기를 결정하는 열팽창계수의 크기는 그림 2에서 보는 바와 같이 거의 차이가 없다. 따라서 핵연료 온도에 영향을 미치는 인자는 핵분열기체의 방출률, 열전도도, 그리고 반경방향 출력분포이다. 핵분열기체 방출량은 그림 8에서 보듯이 혼합핵연료에서 크므로 UO_2 에 비해 갭의 열전도도를 악화시켜 소결체 온도를 증가시키는 효과를 낳는다. 또한 증가된 소결체 온도는 핵분열기체 방출률을 증가시키므로 이 두 인자

는 서로간에 양의 궤한효과 (positive feedback)를 갖고 있다. 열전도도 측면에서는 혼합핵연료의 열전도도가 UO_2 핵연료의 열전도도 보다 낮으므로 온도가 증가하는 효과를 낳으며, 반경방향 출력분포의 측면에서는 거의 전 운전기간에 걸쳐 혼합핵연료에서 상대적으로 많은 열이 소결체 외각에서 발생하므로 혼합핵연료의 핵연료 온도를 감소시키는 효과를 낳는다. 따라서 이 두가지의 증가시키는 효과와 한가지의 감소시키는 효과 중에서 어느 효과가 지배적인가에 따라 UO_2 핵연료의 온도에 대한 혼합핵연료의 상대적인 온도가 결정된다. 그림 7 에는 두 핵연료의 평균온도가 도시되어 있는데 전 운전기간에 걸쳐 UO_2 에서보다 혼합핵연료의 온도가 높게 나타나고 있다. 이는 핵분열기체 방출률 및 열전도도가 핵연료 온도에 미치는 영향이 반경방향 출력분포의 영향보다 큼을 의미한다.

2) 핵분열기체 방출

핵분열기체 방출에 영향을 미치는 여러 인자중에서 가장 중요한 인자중의 하나가 온도이다. 왜냐하면 약 800℃ 이하의 낮은 온도영역을 제외한 온도영역에서는 핵분열기체 방출이 확산에 의해 발생하기 때문이다. 따라서 그림 8에서와 같이 온도가 높은 혼합핵연료에서 핵분열기체 방출률 또한 높게 나타나는 것이 당연하다. 다만 혼합핵연료의 경우, 소결체 제조방법에 따라 미세구조가 UO_2의 미세구조와 매우 다를 수가 있으므로 두 핵연료에서의 핵분열기체 방출의 차이를 정확하게 평가하려면 미세구조의 차이가 핵분열기체 방출에 미치는 영향을 고려해야 한다.

3) 피복관 직경변화

피복관 직경변화는 크립, 열팽창, 그리고 탄성에 의한 직경 변화의 종합적인 결과이다. 그런데 두 핵연료에서 선형출력이 동일하게 주어졌으므로 피복관의 열팽창에 의한 직경변화 또한 같게 나타난다. 하지만 크립 및 탄성의 경우는 다르다. 그림 9에서 보듯이 전 운전기간에 걸쳐 혼합핵연료에서의 핵분열기체 방출률이 크므로 이에 따라 핵연료봉 내압도 크게 나타나게 되어 결과적으로 냉각수 압력과 핵연료봉 내압의 차이가 UO_2의 경우에 비해 작아진다. 따라서 이 압력차이의 영향을 받는 피복관 크립과 탄성 변형은 혼합핵연료에서 작게 나타난다. 또한 크립에 의한 피복관 변형의 차이는 두 핵연료에서 연소도 (시간)에 따라 당연히 증가하고 있다.

4. 결 론

상기의 분석을 바탕으로 UO_2와 비교한 혼합핵연료의 노내거동을 다음과 같이 정리할 수 있다. 혼합핵연료는 UO_2 핵연료에 비해 (1) 열전도도가 작아 핵연료 온도가 높다. (2) 증가된 핵연료 온도로 인해 핵분열기체 방출률이 증가하므로 핵연료봉 내압의 관점에서는 불리하다. (3) 증가된 핵연료봉 내압으로 인해 냉각수 압력과 핵연료봉 내압의 차이가 감소하므로 피복관 변형도는 감소한다. 따라서 PCI 관점에서는 UO_2 핵연료에 비해 유리하다.

5. 참고 문헌

[1] Material Properties Handbook, KAERI, 1994.

[2] MATPRO Version 11

[3] J. M. Bonnerot and M. Beauvy, J. Less-Common Met. 121 (1985) 657.

[4] Yang-Hyun Koo, KAERI Report, 1995.

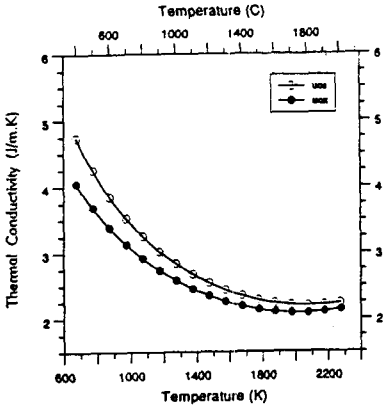

Fig.1. Comparison of thermal conductivity for 95% density UO2 fuel (enrichment : 3.5%) and MOX fuel (Pu-fissile : 3.5 w/o)

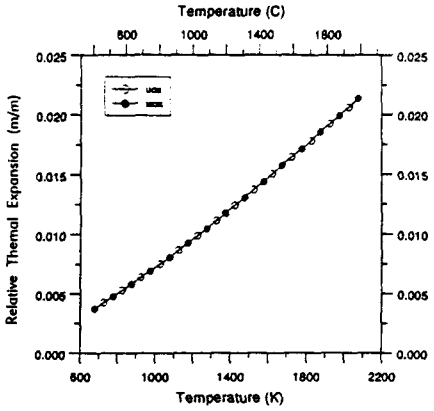

Fig.2. Comparison of relative thermal elongation of UO2 fuel (enrichment : 3.5%) and MOX fuel (Pu-fissile : 3.5%)

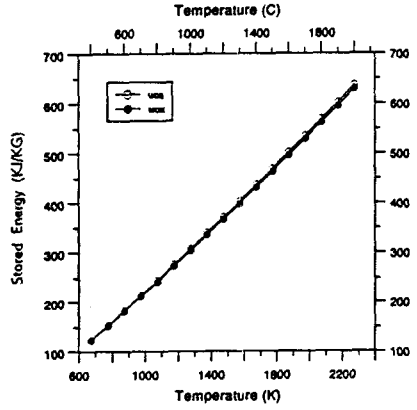

Fig.3. Comparison of stored energy for UO2 fuel (enrichment : 3.5%) MOX fuel (Pu-fissile : 3.5 w/o)

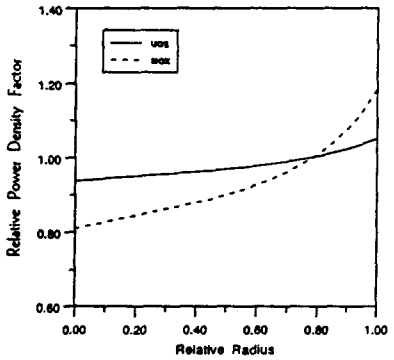

Fig.4. Relative power density factor for UO2 (enrichment : 3.5%) and MOX fuel (Pu-fissile : 3.5%) at 0.0 MWd/kgU

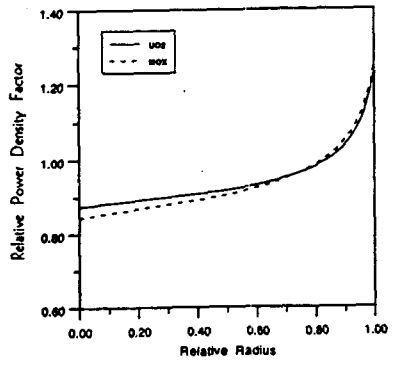

Fig.5. Relative power density factor for UO2 (enrichment : 3.5%) and MOX fuel (Pu-fissile : 3.5%) at 20 MWd/kgU

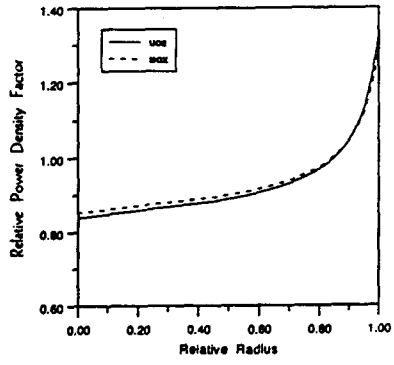

Fig.6. Relative power density factor for UO2 (enrichment : 3.5%) and MOX fuel (Pu-fissile : 3.5%) at 40 MWd/kgU

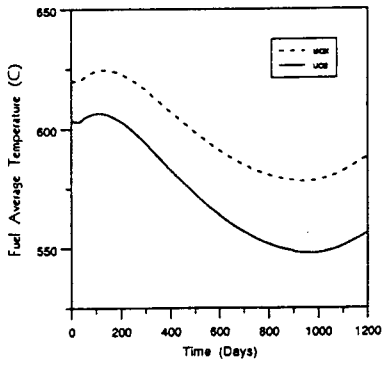

Fig.7. Fuel average temperature for UO2 and MOX fuel

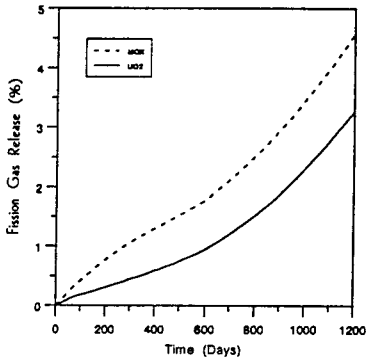

Fig.8. Fission gas release for UO2 and MOX fuel

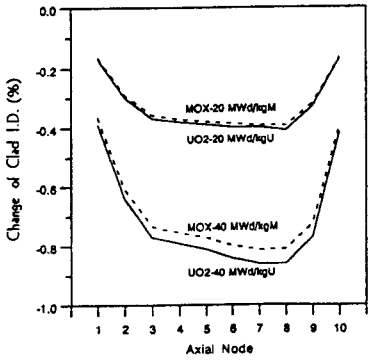

Fig.9. Change of clad inner diameter for UO2 and MOX fuel