

손상 핵연료의 온도 및 산소대 금속 비율의 변화 모형 연구

서영하, 박광현

경희대학교

호 광일

수원대학교

요 약

손상 핵연료의 온도 및 산소대 금속 비율의 변화모형을 연구하였다. 열역학적 분석과 산화과정에 대한 분석을 통해 손상핵연료에서의 핵연료 온도와 핵연료내 O/U값 변화를 기술함으로써 결합발생에 의한 핵연료내 냉각수 침투는 Gap conductance를 떨어뜨리고 소결체 산화에 따른 O/U값 증가로 열전달특성의 저하를 가져와 핵연료의 온도를 상승시킨다는 결과를 얻어냈다.

1. 서론

핵연료 설계 및 제작기술의 발달로 점차 핵연료의 파손율은 줄어들고 있지만, 아직도 핵연료의 파손은 원자력발전소 운영에 지장을 주는 요인 중에 하나로 분류되고 있다[1]. 핵연료가 장주기로 가는 추세에 있어, 핵연료는 점차 가혹한 조건에서 운전될 수 있게끔 설계와 제작이 되고 있다. 핵연료가 일단 손상되면 핵연료내 핵분열생성물의 방출에 의해 그 손상 상태가 알려진다. 이 핵분열생성물의 방출정도와 손상정도는 서로 밀접한 관계가 있어, 이를 근거로 손상 핵연료의 상태와 또한 적절한 원자로의 운전을 통하여 대략적인 위치도 알 수 있다[2]. 핵분열생성물의 방출 기구는 손상핵연료의 거동을 파악하는데 중요한 근거가 되어 이들에 대한 연구가 중요하다. 이들 생성물의 방출은 손상핵연료의 주요 특성과 밀접한 연관이 있다. 특히 손상핵연료의 온도와 핵연료내 산소대 우라늄비율(O/U값)은 운전중 핵분열생성물의 방출에 직접적인 영향을 미치기 때문에 이들에 대한 보다 정확한 분석이 요구된다. 본 연구에선 핵연료가 손상되어 냉각수가 침투하였을 때 손상핵연료의 온도 변화와 시간에 따른 O/U값 변화를 구하였다.

2. 본론

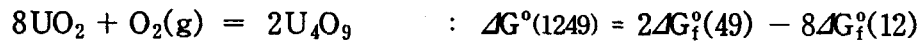
핵연료와 피복관 사이에 수증기가 채워지면서 소결체와 피복관을 산화시키고, 수소를 발생시킨다. 이에 대한 분석을 위해선 열역학적 분석과 산화과정에 대한 분석이 필요하다. 열역학적 분

석에선 온도와 산소포텐셜에 따른 우라늄의 안정한 산화물 형태(UO_2 , U_4O_9 , U_3O_8 등)와 수증기/수소 혼합기체에서 평형 산소포텐셜을 알아야 한다. 이 열역학적 분석 결과를 기초로 하여 핵연료의 산화과정을 묘사하면 손상 핵연료에서 핵연료의 온도와 O/U값의 변화를 기술할 수 있다.

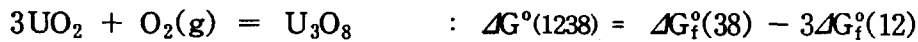
2.1 산화 우라늄과 수증기/수소 혼합기체에서 평형 산소포텐셜

본 연구에선 주요 산화물을 UO_2 , U_4O_9 , U_3O_8 , 그리고 UO_3 이 4개에 한정하여 열역학적 분석을 수행하였다. 각 산화물 상의 경계값(산소포텐셜 또는 평형 산화분압)은 다음과 같이 구한다.

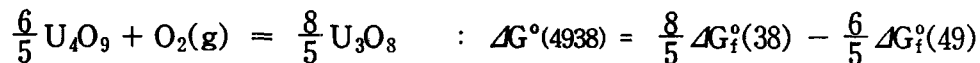
1) UO_2 / U_4O_9 경계값 :



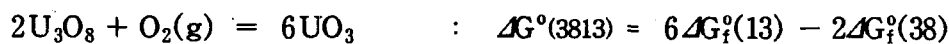
2) UO_2 / U_3O_8 경계값 :



3) U_4O_9 / U_3O_8 경계값 :



4) U_3O_8 / UO_3 경계값 :

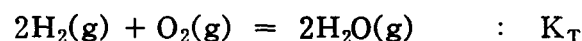


여기서 각 산화물의 경계에서 산소포텐셜과 평형분압 그리고 자유에너지 차이는 아래와 같은 관계식을 갖는다.

$$\overline{\Delta G_{O_2}} = RT \ln P_{O_2} = \Delta G^\circ$$

이 열역학 경계값은 여러 자료를 이용하여 구할 수 있다. 잘 알려진 자료로는 JANAF 자료 [5], Cordfunke[6], 그리고 Naito의 자료[4]가 있다. 본 연구에선 Naito가 정리한 자료를 사용하였다(그림-1, 2참조).

손상 핵연료내 소결체와 피복관 사이 기체에서 산소포텐셜은 수증기내 함유된 수소의 양에 따라 변화하게 된다. 이산화 우라늄의 경우 주변 기체의 산소포텐셜에 의해 열역학적으로 안정한 산화물이 결정되므로 수증기내 수소에 의한 산소포텐셜 변화가 중요해 진다. 수소를 포함하는 수증기에서 산소포텐셜은 고온의 기체 반응으로 평형을 가정하여 열역학적 자료를 이용하여 구할 수 있다. 수소와 수증기는 아래의 반응을 이룬다. 여기서 K_T 는 평형 상수다.



초기에 수증기의 몰수를 N_{H_2O} 함유된 수소의 몰수를 N_{H_2} 라고 하면 반응 후에 수소 및 산소 그리고 수증기의 몰수는 각각 $N_{H_2} + 2xN_{H_2C}$, xN_{H_2O} , $(1-2x)N_{H_2C}$ 가 된다. 여기서 x 는 평형 상태에 도달할 때까지 분해된 수증기의 몰수의 1/2을 나타낸다.

초기 수소와 산소의 몰 비율을 $R_H (= \frac{N_{H_2}}{N_{H_2O}})$ 라 두고 전체 기체의 압력을 P_{tot} 라고 하면,

평형에서 x 값은 다음 식에서 구할 수 있다.

$$\frac{P_{H_2O}^2}{P_{H_2}^2 \cdot P_{O_2}} = \frac{(R_H + 1 + x) \cdot (1 - 2x)^2}{x \cdot (R_H + 2x)^2 \cdot P_{tot}} = K_T$$

그리고, 수소를 함유하는 수증기에서 산소포텐셜($\overline{\Delta G_{O_2}}$)은 아래 식으로 구할 수 있다.

$$\overline{\Delta G_{O_2}} = RT \ln P_{O_2} = RT \ln \left(\frac{x \cdot P_{tot}}{R_H + 1 + x} \right)$$

우라늄 산화물이 안정하게 존재는 영역과 수소를 함유하는 수증기의 산소포텐셜을 그림-1(기체 압력 = 150기압)과 그림-2(기체 압력 = 1기압)에 나타내었다. 그림-1에서 볼 수 있듯이, 순수한 수증기에 노출된 핵연료는 대략 1300°C 이하에선 U_3O_8 로 존재하고 그보다 고온에선 UO_2 로 존재한다. 그러나 약간의 수소가 존재하면 산소포텐셜이 급격히 변화한다. 예를 들면 수증기가 0.1%의 수소를 함유하게 되면, U_3O_8 상은 더이상 존재하지 않는다. 그림-2에선 대기압 하에서 수증기-수소 혼합기체의 산소포텐셜을 나타내고 있다. 순수 수증기에서 산소포텐셜 값은 150기압의 경우보다 감소함을 알 수 있다. 순수 수증기에서 약 1100°C 이상에선 UO_2 만이 존재하고, 그보다 저온에선(약 800°C 이하) U_3O_8 로 존재한다. 이는 실험에서 흔히 관측되는 현상이다. 수소의 함유량이 증가되면 산소포텐셜은 수소함유량에 의해서만 결정된다.

JANAF와 Cordfunke의 자료로도 이와 같은 그림을 그릴 수 있다. 이 경우에도 대략 유사한 형태의 온도와 산소포텐셜 값에 따른 산화물 diagram을 갖는다. 그러나 경계값은 서로 약 20%의 차이를 갖는 것으로 나타났다.

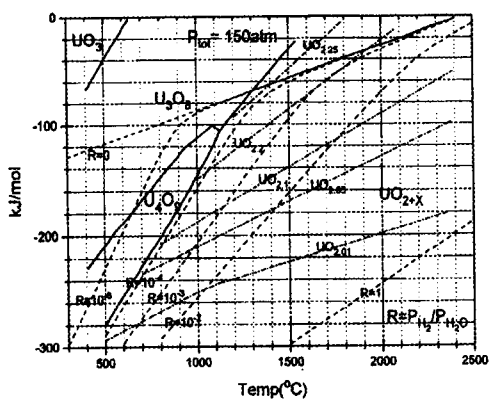


그림 1. 산소포텐셜과 온도에 따른 우라늄 산화물의 상태도와 수소-수증기 혼합기체의 산소포텐셜(압력 : 150기압). R값은 혼합기체 속의 수소의 함량임.

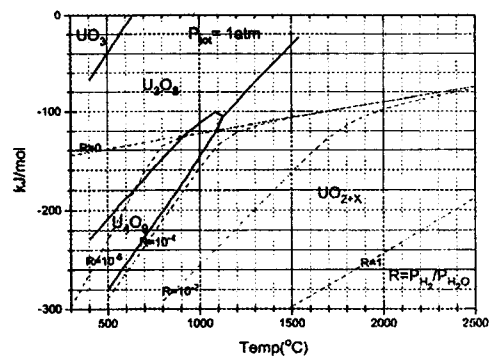


그림 2. 산소포텐셜과 온도에 따른 우라늄 산화물의 상태도와 수소-수증기 혼합기체의 산소포텐셜(압력 : 1기압). R값은 혼합기체 속의 수소의 함량임.

2.2 핵연료의 온도 분포

핵연료의 온도분포 계산에 있어서 특히 고려해야 할 점은 소결체인 산화당량초과우라늄 (UO_{2+x})의 열전도도와 핵연료 온도에 가장 큰 영향을 미치는 소결체와 피복관 사이 Gap conductance 이다.

소결체 열전도는 Washington의 산화당량 초과 이산화우라늄 (UO_{2+x})의 열전도도 실험식을 Martin이 조정 한 식을 사용하였다[7].

소결체와 피복관 사이 Gap conductance 는 다음 식으로 나타난다.

$$h_{gap} = \frac{k_{gas}}{\delta_{gap} + C \cdot R_{eff} + (g_1 + g_2)} + h_{ra}$$

k_{gas} 은 gap사이에 존재하는 기체의 열전도도, δ_{gap} 은 gap size, R_{eff} 는 소결체와 피복관의 roughness를 나타내는 값, C는 상수 값이며 g_1 과 g_2 는 소결체와 피복관 주위의 온도 기울기에 의한 gap size의 보정치이며 h_{rad} 는 복사에 의한 열전달상수이다.

2.3 핵연료 산화에 의한 O/U값 변화.

고압의 수증기에서 이산화우라늄의 산화에 관하여 아직도 확실히 알려지지 않고 있지만 아래와 같은 실험식이 주로 통용되고 있다[3].

$$\frac{dx}{dt} = \alpha [x_e - x(t)] \frac{S}{V}$$

여기서 x 는 산화당량 초과값 (UO_{2+x} 에서의 x 값), x_e 는 주변 기체와 평형을 이룰 때 산화당량 초과값, $\frac{S}{V}$ 는 surface to volume ratio이며, α 는 아래와 같이 주어진다.

$$\alpha(m/s) = 36.5 \times 10^{-2} e^{\frac{-23,500}{T}}$$

2.4 핵연료 온도 및 O/U 계산 결과.

O/U값은 소결체의 열전도도에 영향을 미치고, 핵연료의 온도는 소결체의 산화속도에 서로 영향을 미친다. 아울러 계산상의 비교를 위해 아래의 가정을 사용하여 손상 핵연료의 온도 및 O/U 값을 계산하였다.

- i) 손상핵연료의 소결체, 피복관의 크기에는 변화가 없다.
- ii) 수소의 이동이 매우 빨라 핵연료 내에 수소 농도는 일정하다.
- iii) 이산화우라늄 핵연료에 많은 균열이 존재하여 2.3절의 이산화우라늄 산화률이 적용 가능하다.

그림-3은 초기에 3MPa의 He이 있는 핵연료에 결함이 생겨 수증기가 gap을 채웠을 때, 핵연료 내부의 온도 변화를 나타낸 것이다. gap size에 변화가 없고, 수증기에 의해 감소된 gap conductance에 의해 핵연료 중심 온도가 500℃ 이상 증가되는 것으로 나타나 있다. 이 핵연료의

선출력은 200W/cm이다.

그림-4는 선출력이 400W/cm일 때, 결합 핵연료의 초기 온도 변화를 나타낸 것이다. 이 경우에도 핵연료 중심 온도가 대략 450°C 정도 증가되고 있다. 여기서 핵연료의 gap size를 50 μ m로 정하였다.

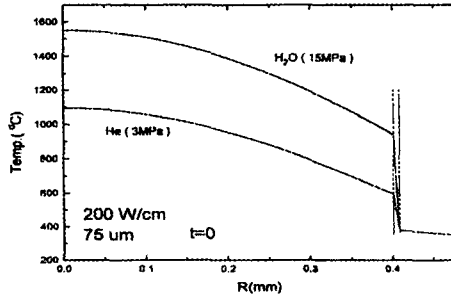


그림 3. gap속에 He이 차있는 핵연료에 수증기가 침투하였을 때 온도 변화. 열출력은 200 W/cm.

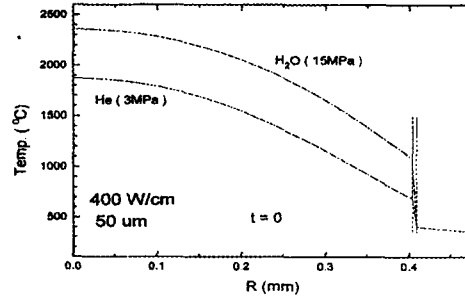


그림 4. gap속에 He이 차있는 핵연료에 수증기가 침투하였을 때 온도 변화. 열출력은 400 W/cm.

그림-5는 평균 출력, 200W/cm를 갖는 핵연료가 손상된 후 시간에 따른 온도 및 O/U값의 변화를 나타낸 그림이다. 그림-1에서 볼 수 있듯이 순수 수증기와 평형을 이루게 되면 고온 부에선 이산화 우라늄으로 존재하고 저온부에선 U_3O_8 으로 존재한다. 온도가 높은 고온 부에선 수증기와의 반응에 의해 빠른 시간 내에 평형상태의 O/U값을 갖게 되지만 저온부에선 낮은 반응 속도에 의해 O/U값의 변화가 매우 더디게 나타나고 있다.

그림-6은 수증기에 0.1%의 수소가 함유되었을 때, 온도 및 O/U값 변화를 나타낸 것이다. 그림-1에서 볼 수 있듯이 이 경우 이산화우라늄을 초과하는 산화물을 가질 수 없다. 그리고 고온 영역에서 빨리 O/U값에 변화가 생기는 것을 알 수 있다. 또한 증가된 O/U값에 의해 핵연료의 중심 온도가 증가하는 것을 볼 수 있다.

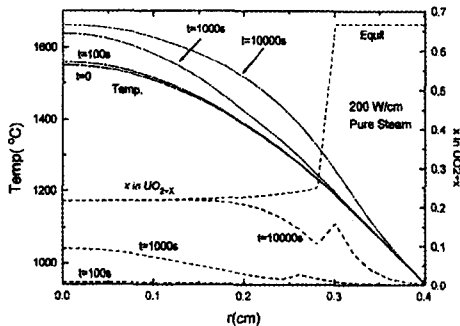


그림 5. 순수한 수증기하에서 시간에 따른 핵연료의 온도 분포 및 O/U값 변화. 열출력은 200W/cm이다.

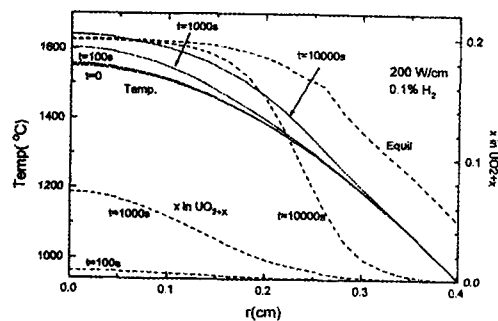


그림 6. 시간에 따른 핵연료의 온도 분포 및 O/U값 변화. 기체는 0.1%의 수소를 함유하고 있음. 열출력 200 W/cm.

3. 결론

1) 온도와 산소포텐셜에 따른 우라늄과 산소의 상태를 작성하였다. 아울러 수증기와 수소의 평형 관계식을 사용하여 수증기와 수소 혼합기체에서 평형 산소 분압을 구하였다. 계산 결과 이산화우라늄의 산화 - U_3O_8 또는 U_4O_9 으로 -는 수증기 속의 수소 함량에 매우 민감한 것으로 나타났다.

2) 간단한 가정으로 손상 핵연료의 온도와 O/U값 변화를 구하였다. He이 차 있는 손상 핵연료의 온도는 수증기에 의한 gap conductance의 변화에 의해 크게 증가하였다. 그리고 O/U값의 증가로 인해 핵연료의 온도는 더욱 증가하는 것으로 나타났다.

3) 이와 같은 간단한 모형으로 핵연료의 기본 특성이 온도 및 O/U값 변화를 구할 수 있었으나 실제의 상황은 매우 복잡하므로 보다 많은 연구가 필요하다. 예를 들면 손상된 구멍 크기에 따른 손상핵연료의 거동, 수소의 흡수에 따른 Steam Starvation현상의 정량화, 소결체의 수증기에서 산화 등등에 대한 보다 상세한 연구가 필요하다.

참고 문헌

1. A.Strasser, D.O'Boyle and R.Yang, 'Reliability-The First Priority in Fuel Performance', in 1994 International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, West Palm Beach (1994)
2. T.Ingemansson, A.Reinvall, J.Lejon, S.Lundberg and H.Zwicky, 'An Advanced Method for Flux Tilting,' in 1994 International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, West Palm Beach (1994)
3. B.Lewis, R.MacDonald, N.Ivanoff and F.Iglesias, Nucl. Tech. 103 (1993) 220
4. K.Naito and N.Kamegashira, Advances in Nuclear Science and Tech. vol.9, p99 (1976) Academic Press.
5. I.Barin, 'Thermochemical Data of Pure Substances,' (1989) VCH
6. E. Cordfunke, 'Thermochemical Data for Reactor Materials and Fission Products' (1989) North-Holland
7. D.G.Martin, J. Nucl. Mater. 110 (1982) 73