2003 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

2 영역 2 단계 핵분열 생성물 방출 모델 개발 및 고연소 핵연료 열전도도 모델 검증연구

Development of two step two stage Fission Gas Release Model and Verification of High Burn-up UO_2 Thermal Conductivity Models

김용수, 이효철, 임병주, 손승범
한양대학교

이찬복, 김대호, 양용식
한국원자로력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

이 연구에서는 핵분열 생성 기체의 확산을 핵연료 기지 내의 확산과 결정립계 내에서의 확산의 두 영역으로 분리해 접근하는 2 영역 확산 방출과 고연소에서 크게 증가하는 결정립계 확산을 해석적으로 모사한 고연소 핵연료 핵분열 생성 기체 2 영역 2 단계 방출 모델을 개발하였다. 이 2 영역 2 단계 모델의 검증을 위해 FRAPCON-3 모델의 검증을 위해 사용된 in-pile 실험 자료들을 수집하여 그 예측의 정확성을 평가한 결과 적어도 수집된 9 개 자료 범위 안에서는, 현재 개발 활용되어 널리 사용되고 있는 다른 모델들에 비해 연소도 전 영역에서 모두 상대적으로 정확한 결과를 내고 있는 것으로 드러났다. 이와 함께 고연소 핵연료의 성능에 중요한 영향을 미치는 소결체 열전도도의 최근 자료들을 수집 비교 검증하였다.

Abstract

In the first part of this study, 2 stages – 2 steps fission gas release model is developed, especially for high burn-up prediction. The mechanistic model mathematically simulates the two steps diffusion processes, matrix diffusion and grain boundary diffusion along with the two steps burn-up enhancement factor. For the benchmarking of the model, popular in-pile data sets already used in FRAPCON-3 code are taken. It turns out that at least within the burn-up limitation of the data sets predictions of the fractional release are comparatively better agreement with those of in-pile experimental results.

In the second part, recent models and experimental results of UO_2 thermal conductivity are collected and reviewed since it is one of the most influencing factors on the high burn-up nuclear fuel performance. Then they are thoroughly analyzed for the benchmarking of the models with the in-pile data sets also used in FRAPCON-3 code.

1. 서론

우라늄 자원의 효율적인 활용과 원자력 자원의 경제성 향상을 위해 고성능 고효율 핵연료 개발이 현재 국제적으로 활발히 진행 중에 있으며 일부 국가의 경우 개발 완료 단계에 돌입하고 있다. 많은 원자력 선진국에서는 특히 원자력 발전에서 약 30%의 비중을 차지하는 핵연료 주기 비용을 줄이기 위한 장주기형 핵연료 개발이나 고연소도 핵연료 기술 개발을 위하여 많은 노력을 경주하고 있다. 이러한 핵연료가 갖추어야 할 성능 요구 조건은 노내 연소동안 이러한 혹독한 환경아래서 발생하는 열적, 물리적, 화학적 변화가 핵연료의 건전성을 저해하지 않으면서 안전하게 목표 연소값에 이르는 것이다. 그러나 핵연료는 원자로심에서 고온 방사선 하에서 연소하므로 여러 물리적·화학적 변화를 겪게 된다. 노내 연소동안 수반되는 이러한 변화로 여러 가지 현상이 있지만 핵분열 생성 기체 방출과 핵연료 소결체의 열전도도가 주요한 것으로 판단되며 이런 맥락에서 핵분열 생성 기체 방출과 핵연료 소결체의 열전도도에 대한 철저한 이해가 필요하다.

본 연구에서는 핵분열 생성 기체 방출에 대한 독자적인 모델을 개발 하였고 기존의 모델들과 비교 분석하였다.또한 핵연료 소결체의 열전도도에 관한 주요 인자를 조사하고 최근 모델들을 수집 및 비교/검증하였다.

2. 핵분열 생성물 방출 모델 개발

가. 핵분열 생성물 방출 모델 개발 배경

이 연구에서는 핵분열 생성 기체의 확산을 핵연료 기지 내의 확산과 결정립계 내에서의 확산의 두 영역으로 분리해 접근하는 2영역 확산 방출과 고연소에서 크게 증가하는 결정립계 확산을 해석적으로 모사한 고연소 핵연료 핵분열 생성 기체 2영역 2단계 방출 모델을 개발하였다. 이 모델 역시 다른 모델들처럼 핵분열 생성 기체의 최종 방출은 결정립 경계면에서 이루어진다는 가정에 근거하고 있으나, 다른 모델과는 달리, 생성 기체의 결정 입자 내 1영역의 확산에 이어 결정립계에 축적되는 생성 기체의 양을 가정하지 않고 그 양에 대한 2영역 확산 보존 방정식을 세워 시간의 함수로서 직접 풂음으로서 결정립계에서의 생성기체의 거동을 수학적으로 그대로 모사하고 있다.

또한 연소도에 따라 2영역 즉 결정립 기지내와 결정립계면에서의 핵분열 생성기체의 확산 거동을 분석한 결과 일반적으로 알려진 바와는 달리 고연소도에서는 결정 기지내 기체 확산만이 주요 rate-limit step이지만 저연소도에서는 기지내 확산 뿐만 아니라 결정립계면의 기체 확산 거동도 전체 기체 방출에 경쟁적인 rate-limiting step으로 작용하는 것으로 드러났다. 따라서 25,000 MWd/MtU 를 기준으로 저연소와 고연소의 두 영역 기체 확산 거동을 모두 모사할 수 있는 2단계 확산계수를 도입하였다.

나. 2영역 2단계 확산 모델

2영역 2단계 확산 모델을 해석적으로 모사할 수 있는 기체 확산 보존 방정식은 다음과 같이

결정 입자 내 보존 방정식과 결정립계 내 보존방정식의 연립 편미분 방정식으로 쓸 수 있다.

<u>결정 입자 vs. 결정립계 내 기체 확산</u>

결정입자내 기체 확산 방정식과 초기 및 경계조건은 다음과 같다.

$$\frac{\partial C_v}{\partial t} = D_v^{eff} \frac{1}{R^2}\frac{\partial}{\partial R}\left(R^2 \frac{\partial C_v}{\partial R}\right) + \beta$$

초기 조건: $C_v(R, 0) = 0$
경계 조건: $C_v(0, t) = finite$

$C_v(a, t) = \overline{C}_{gb}(t)$

이 때 β 는 $y\dot{F}$ 이며 C_v 는 핵분열 생성 기체의 핵연료 결정 입자 기지 내 단위 부피당 농도이다. 실제의 결정 입자는 다면체이나 생성 기체의 확산 특성상 등가 구형 결정 입자를 가정하여 취급해도 큰 차이가 없으므로 이 모델에서는 구형 결정입자를 가정하였다. 따라서 이 지배 방정식은 구좌표계를 사용하여야 하며 a는 이 구형 입자의 반지름이다. 그리고 D_v^{eff} 는 Speight의 연구 결과를 통해서 정의된 유효 확산 계수를 채택하여 고연소 핵연료의 결정 입자내 존재하는 버블과 확산 핵분열 생성 기체의 상호 작용도 고려하였다.

입계면에서의 기체 농도는 앞에서 설명한 바와 같이 결정립계내 생성 기체의 평균 농도와 같고 시간의 함수이다.

결정입계내 기체 확산 방정식과 초기 및 경계조건은 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$w\frac{\partial C_{gb}}{\partial t} = wD_{gb}^{eff} \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r \frac{\partial C_{gb}}{\partial r}\right) - 2D_v^{eff}\left(\frac{\partial C_v}{\partial R}\right)_{R=a}$$

초기 조건: $C_{gb}(r,0) = 0$

경계 조건: $C_{gb}(0, t) = finite$

$C_{gb}(b,t) = 0$

여기서 w 는 핵분열 생성 기체가 확산 통과하는 입계면의 두께, D_{gb}^{eff} 는 입계면에서의 effective 확산 계수이다. 이와 같이 입계면 확산 방정식에도 기지 내의 유효 확산 계수 D_v^{eff} 와 동일한 개념의 유효 확산 계수를 도입한 것은, 입계면을 따라 확산하는 핵분열 생성 기체도 입계면에 형성된 버블들에 의해 포획되거나 혹은 포획된 생성 기체가 고에너지를 가진 핵분열 파편에 의해

입계면 내로 다시 삽입되는 등 유사한 과정을 겪을 것으로 예상할 수 있기 때문이다.

이 모델의 경계 조건은 입계면을 따라 확산한 기체가 입계면의 모서리에 도달하면 곧 바로 방출되는 것으로 설정하였다. 결정립계면을 따라 확산하는 생성 기체들의 확산 거동은 그 특성상 원통형 좌표계의 반경 방향으로의 확산으로 설명할 수 있기 때문에 위 방정식에서는 원통형 좌표계를 사용하는 것이 타당할 것이다. 이 때 b는 입계면을 등가 원통으로 가정할 때 그 반지름에 해당된다. 이 확산방정식의 우변 두 번째 항은 결정 입자 기지 내 확산을 통해 입계면 단위 면적 당 도달하는 생성 기체의 양으로 한 입계면은 두 개의 결정 입자와 맞닿아 있으므로 실제 도달하는 양은 이 값의 2배가 된다.

<u>제 3종의 경계조건을 이용한 방출 모델</u>

결정립계내 기체 확산 방정식을 Green function을 이용해 풀어주고, 결정 입자내 1단계 기체 확산 방정식의 결정립계 경계조건인 $\overline{C}_{gb}$ 를 얻기 위해 quasi-steady state를 적용하면 다음과 같은 제3종의 경계조건을 얻을 수 있다.

$$\alpha \frac{\partial C_v}{\partial R}\bigg|_{R=a} - C_v(a,t) = 0$$

이 때 $\alpha = \dfrac{2D_v^{eff}}{w\beta_1^2 D_{gb}^{eff}}$ 이다.

이 경계 조건을 이용해서 in-pile case의 핵분열 생성 기체 확산 방정식을 풀면 아래와 같은 최종 핵분열 생성기체의 방출비 F를 얻을 수 있다.

$$F \cong \frac{4}{\sqrt{\pi}}\left(\frac{a}{\alpha + a}\right)^2 \left(\frac{D_v^{eff} t}{a^2}\right)^{1/2} - \frac{3}{2}\left(\frac{a}{\alpha + a}\right)\left(\frac{D_v^{eff} t}{a^2}\right)$$

이 in-pile case의 해는 만일 $\alpha = 0$ 의 값을 가지면 in-pile Booth model과 같은 값을 가진다는 것을 알 수 있다.

앞의 핵분열 생성 기체 방출비 식에서 $\alpha >> a$ 이므로

$$\left(\frac{a}{\alpha + a}\right)^2 \cong \left(\frac{a}{\alpha}\right)^2$$ 라 할 수 있고,

정상 상태 핵분열 생성기체 방출에서 α 의 물리적인 의미를 고려하면

$$\alpha \cong \frac{D_v^{eff}}{D_{gb}^{eff}} = \frac{D_{v_0}^{eff}}{D_{gb_0}^{eff}} e^{-\left(Q_v^{eff} - Q_{gb}^{eff}\right)/RT}$$ 이다.

연소도에 따라 작아지는 Q_{gb}^{eff} 를 $f_{Bu} Q_{gb}^{eff}$ 으로 쓰는 대신 $\alpha = \dfrac{D_{v_0}^{eff}}{D_{gb_0}^{eff}} e^{-Q/(RT + \beta Bu)}$ 로 변형시키면, 다음의 관계를 얻는다.

$$\left(\frac{a}{\alpha + a}\right)^2 \cong \alpha_0 e^{-Q_2/(RT+\beta Bu)}$$

이때 $\alpha_0 = \left(\frac{aD^{eff}_{gb_0}}{D^{eff}_{v_0}}\right)^2$ 이고 Q_2 = -2Q임을 알 수 있다.

이상의 논의를 종합해 개발된 2영역 2단계 핵분열 생성 기체 방출 모델의 방출율 F는 최종 다음과 같이 표현된다.

$$F = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{Q_2}{RT + \beta Bu}\right)\left[\left(\frac{D_0}{a^2}\right)\exp\left(-\frac{Q_1}{RT}\right)t\right]^{1/2}$$

이 때 연소도 함수인 Bu은 Max(0,Burnup-25000)으로 실험적으로 잘 알려진 대로 25000 MWd/MtU 이하에서는 고려하지 않는 것으로 하였다. 이 모델과 함께 이 모델에 소개된 상수 값들을 도출하기 위해 검증을 실시하고 좀 더 정확한 예측을 위해 각 모델의 상수들을 best-curve fitting한 결과

Q_1 = 45,527

Q_2 = 5,577

α_0 = 1.8174

$\left(\frac{D_0}{a^2}\right)$ = 0.00856

β = 0.9

의 값들이 최적 상수값으로 도출되었고 이렇게 구해진 최적 상수값들을 이용해 핵분열 생성 기체 방출비를 각 온도에 따라 도시하고 다른 모델들과 비교한 결과는 아래와 같다.

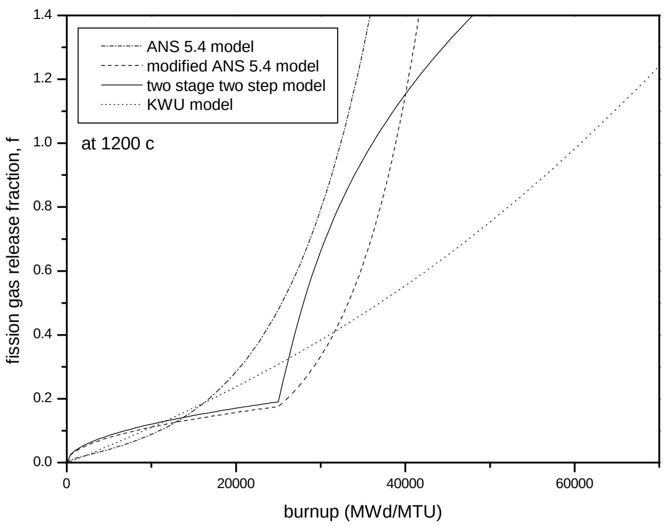

그림 2.1 주요모델별 FGR 비 vs. 연소도 (1200 ℃)

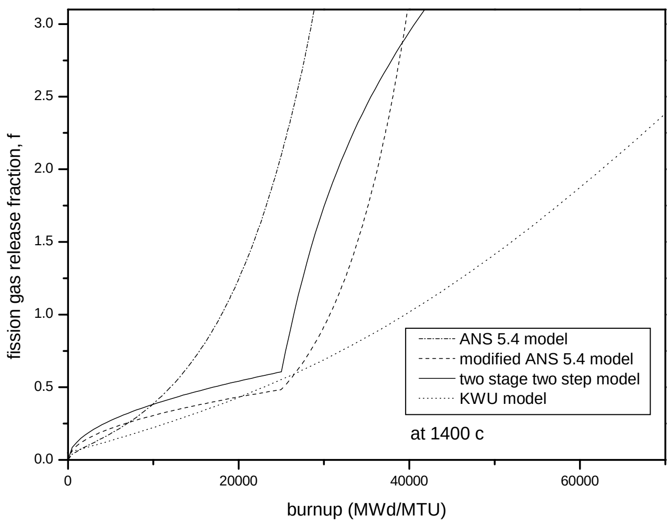

그림 2.2 주요모델별 FGR 비 vs. 연소도 (1400 ℃)

이 그림들에서 알 수 있듯이 1단계 저연소도에서의 핵분열 생성기체 방출율은 modified ANS 5.4와 비슷하고 고연소 영역인 2단계 영역에서는 연소도 영향 크기에 있어 서는 기존의 모델들과 유사하지만 연소도에 따른 증가 곡률이 반대인 것을 알 수 있다. 실제 일반적으로 채택되어 사용되는 연소도 영향인자들은 매우 경험적인 값이지만 연소도가 증가함에 따라 무한대로 증가하는 매우 비과학적인 추론에 근거하고 있다. 이 2영역 2단계 모델에서처럼 일단 방출율이 크게 증가하지만 그 증가율은 일정값에 수렴하는 것이 더 과학적임에 틀림없다.

이처럼 물리적인 이론에 바탕을 둔 2 영역 2 단계 모델의 in-pile data 예측결과는 다음그림에 나타나 있다.

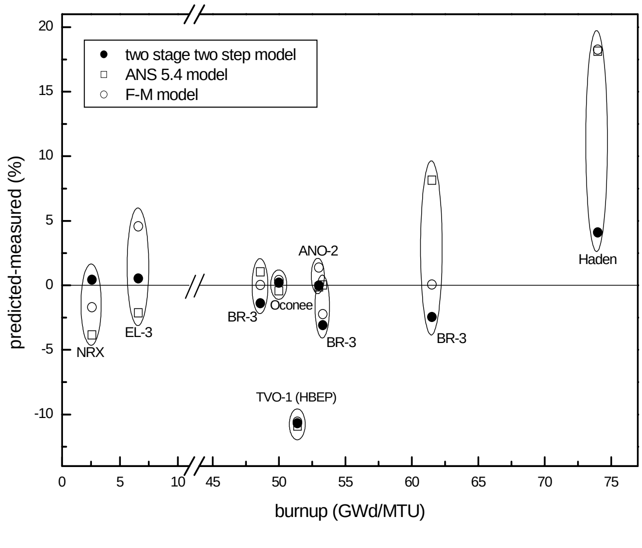

그림 2.3 2영역 2단계 모델 예측값과 실험결과의 비교결과

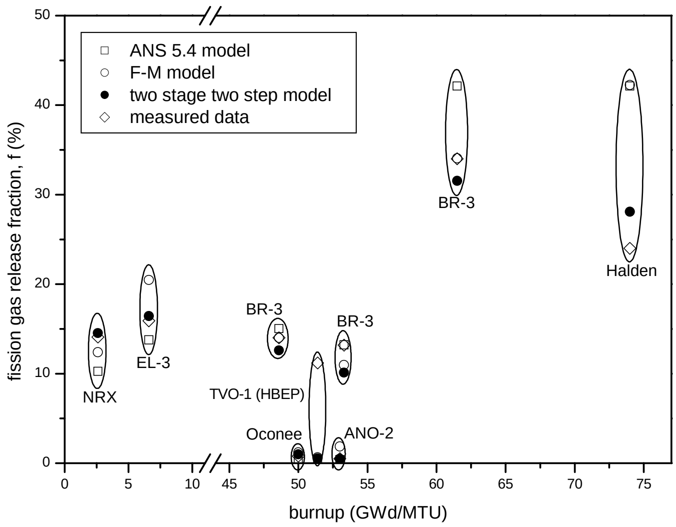

그림 2.4 2영역2단계 모델과 실측값 차이를 통한 비교 검증 결과

이 그림에서 알 수 있는 것처럼 새로 개발된 2영역 2단계 모델은 저연소도와 고연소도 모든 구간에서 고르게 실험결과와 잘 예측하고 있으며 특히 고연소도에서 예측결과는 비교대상인 ANS5.4 모델이나 Forsberg-Massih 모델보다 훨씬 더 잘 예측하고 있는 것으로 드러났다. 그림 2.4는 그림 2.3의 결과를 예측한 값에 대한 실측값의 차로 다시 도시하였는데 이 그림을 통해 새로운 모델이 전 연소도 영역에서 고르게 실측값에 매우 근사한 결과를 예측하고 있다는 것을 좀 더 분명하게 알 수 있다.

사실 새로운 2영역 2단계 모델이 좀 더 정확한 예측을 할 수 있는 것은, 다른 많은 모델들이 연소도만의 함수로 경험적인 연소도 증가인자를 기술하는 것과는 달리, 이 모델은 고연소도에서의 가속화된 핵분열 생성 기체방출을 2영역 확산과정의 이해를 통해 온도와 연소도의 함수로 표현하고 있기 때문에 좀 더 많은 인자로 기체확산 방출거동을 모사할 수 있기 때문이다. 또한 ANS5.4 모델이나 F-M 모델 등에서 채택하고 있는 연소도 증가인자는 기체방출율이 연소도의 증가에 따라 급격히 증가한다는 사실을 경험적으로 잘 표현하고 있으나 연소도가 증가함에 따라 방출비가 연소도에 지수승으로 증가한다고 표현함으로써, 어떤 경우 즉 연소도가 아무리 증가해도 기체방출비는 1보다 클 수 없고 결국 100% 방출율에 수렴해야 함에도 불구하고 방출비가 무한대까지 증가한다고 예측하고 있기 때문에 초고연소도에서의 실제 실측값과 큰 차이가 발생할 수 밖에 없다. 2영역 2단계 모델은 고연소도에서 원활한 결정입계면 기체확산으로 인해 전체 확산계수가 증가하지만 이 연소도 증가인자는 100% 방출비에 수렴하는 꼴로 나타나야 한다는 것을 모델의 유도과정을 통해 잘 보여주고 있으며 이러한 물리적 근거를 바탕으로 도출한 상수값을 이용한 방출비 예측 결과는 실측값과 잘 맞는다는 것을 증명하고 있다.

2영역 2단계 모델 자체가 시간 변화에 따른 결정입자 내와 결정립계 면에서의 핵분열 생성 기체의 보존방정식이므로 천이상태 모델은 이 2영역 2단계모델을 그대로 풀어내는 것으로 설정할 수 있다. 즉 다음의 두 연립 미분 방정식을 수치해법으로 직접 풀고 방출비 F을 구하는 것이 2영역 2단계 천이상태 모델이 될 것이다.

다시 말해서,

$$C_v(R,t) = \beta t\left[1-4\left(\frac{a}{R}\right)\sum_{n=0}^{\infty}\left\{i^2\cdot erfc\left(\frac{(2n+1)a-R}{2\sqrt{D_v^{eff}t}}\right)-i^2\cdot erfc\left(\frac{(2n+1)a+R}{2\sqrt{D_v^{eff}t}}\right)\right\}\right]$$

$$-\frac{2\pi D_v^{eff}}{aR}\sum_{n=1}^{\infty}(-1)^n\cdot n\cdot\sin\left(\frac{n\pi R}{a}\right)\int_0^t \exp\left(\frac{D_v^{eff}n^2\pi^2(\lambda-t)}{a^2}\right)\phi(\lambda)d\lambda$$

$$w\frac{\partial C_{gb}}{\partial t} = wD_{gb}^{eff}\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial C_{gb}}{\partial r}\right)-2D_v^{eff}\left(\frac{\partial C_v}{\partial R}\right)_{R=a}$$

를 반복적으로 이용해 각각의 해 $C_v(R,T)$와 $C_{gb}(r,t)$를 구한 후 방출비 F를 구할 수 있을 것이다. 물론 이때 반복법 적용을 위해 사용되는 초기 $C_{gb}(r,t)$는 0이 가장 적합할 것이다.

3. 최근 고온 고연소도 UO_2 열전도도 비교 검증

현재 원자력 선진국들은 고연소, 장주기 노심 운영 체제를 통해 핵연료의 에너지 효율을 높이는 노력을 경주하고 있고 이에 따라 핵연료의 열적, 물리적, 화학적 변화를 평가하여 주요 성능 물성 모델들을 개발하여 고성능 핵연료의 설계 및 개발에 활용해 왔다. 고연소도로 갈수록 노내 거동을 정확히 예측할 수 없게 됨에 따라 독자적인 고연소 조사시험자료의 축적을 통해 고연소 하에서의 연료봉 성능 자료를 분석, 고연소도용 연료봉 성능 모델을 개선/개발하는 작업을 수행하고 있고 일부는 개발이 완료되어 실제 핵연료봉 설계와 성능평가에 반영하고 있다. 국내에서도 국책 과제의 일부로서 고연소용 경수로 신형핵연료 성능 평가 코드 개발 연구를 수행하고 있다.

이러한 고연소 장주기용 핵연료 성능 평가 코드에 영향을 끼치는 요소 중 핵연료 중심온도에 민감한 열적 물성치인 UO_2 열전도도에 관한 최근 모델들을 조사하고 노내 상황을 예측하는 대표적인 코드 FRAPCON-3 를 사용하여 각 모델을 검증 및 비교/평가하여 보았다.

<u>Lucuta 모델 (1996)</u>

최근 연구에서 그는 Harding의 모델을 조사전 100% 이론 밀도를 가진 UO_2 열전도도 K_0 로 채택하고 실험 자료들을 바탕으로 모든 burn-up영역에서 유효하게 사용될 수 있는 인자화된 (factorized) 공식을 제안하였다.

$$K = f_{1d}\,f_{1p}\,f_{2p}\,f_{3x}\,f_{4r}K_0 \quad (W/mK)$$

▶ 용해된 핵분열 생성물의 영향, $f_{1d}(\beta)$:

$$f_d(\beta) = \left(\frac{1.09}{\beta^{3.265}}+\frac{0.0643}{\sqrt{\beta}}\sqrt{T}\right)\arctan\left\{\frac{1}{1.09/\beta^{3.265}+\left(0.0643/\sqrt{\beta}\right)\sqrt{T}}\right\}$$

▶ 석출된 핵분열 생성물의 영향, $f_{1p}(p)$:

$$f_{1p}(p) = 1 + \left(\frac{0.019\beta}{3 - 0.019\beta}\right)\frac{1}{1 + \exp\{-(T - 1200)/100\}}$$

► Porosity와 Bubble의 영향, f_{2p}: $f_{2p} = \dfrac{1-p}{1+(1-\sigma)p}$

► U/O비에 의한 영향, f_{3x}: $f_{3x} = 1$

► Radiation damage에 의한 영향, f_{4r}: $f_{4r} = 1 - \dfrac{0.2}{1 + \exp\{(T - 900)/80\}}$

여기서, T 는 온도(Kelvin), β 는 연소도(%), p 는 pore와 bubble의 부피 비율 그리고 σ 는 pore shape factor 를 나타낸다.

FRAPCON-3 모델 (1997)

FRAPCON-3 모델은 온도나 radiation damage, burn-up, porosity에 대한 영향을 포함한다.

$$K = f_d f_p f_m f_r K_o$$

► 용해된 핵분열 생성물의 영향, f_d:

$$f_d = \left(\frac{1.09}{B^{3.265}} + \frac{0.0643}{\sqrt{B}}\sqrt{T}\right)\arctan\left\{\frac{1}{1.09/B^{3.265} + \left(0.0643/\sqrt{B}\right)\sqrt{T}}\right\}$$

► 석출된 핵분열 생성물의 영향, f_p:

$$f_p = 1 + \left(\frac{0.019\beta}{3 - 0.019\beta}\right)\frac{1}{1 + \exp\{-(T - 1200)/100\}}$$

► Porosity와 Bubble의 영향, f_m: $f_m = \dfrac{1-p}{1+(s-1)p}$

► Radiation damage에 의한 영향, f_r: $f_r = 1 - \dfrac{0.2}{1 + \exp\{(T - 900)/80\}}$

여기서, T 는 온도(Kelvin), B 는 연소도(%), p 는 pore 와 bubble의 부피 비율 그리고 s 는 pore shape factor 를 나타낸다.

Halden 모델 (1997)

노르웨이 Halden의 실험로에서 수년간 수행되어 개발된 Halden model은 연소도의 증가로 인한 열전도도의 감소 현상에 대해 초점을 맞추고 있으며, 이 in-pile실험 결과를 바탕으로 기존에 제시되어온 열전도도에 대한 공식을 수정함으로써 새로운 모델을 제시하였다.

이 모델은 UO_2 열전도도를 phonon interaction과 고온에서의 전자의 역할로 설정하고 phonon의 영향을 서술하는 $1/(A+BT)$의 식에서 'A'를 연소도에 대한 함수로 가정하였으며, 전자에 대한 기여도를 나타내는 함수를 MATPRO에서 제안한 함수로 적용하여 95% 이론 밀도의 UO_2에 대한 열전도도 모델을 다음과 같이 제시하였다.

$$K = \frac{1}{0.1148 + 0.0035B + 2.475\times10^{-4}(1-0.00333B)T} + 0.0132\exp^{(-0.00188T)}$$

여기서, T 는 온도(℃)를, B 는 연소도(MWd/kgU)를 나타낸다.

<u>Fink 모델 (2000)</u>

Fink가 제안하는 열전도 모델은 최근까지 연구되어온 UO_2의 열전도 과정에 대한 이해와 실험 자료들에 근거하고 있다. 그녀는 UO_2에서의 열전도 과정은 거의 격자 운동과 전자에 의한 열 수송(transport)에 기인한다고 하였으며, Ronchi에 의해서 제안된 모델을 바탕으로 새로운 phonon lattice term 을 도입하여 95% 밀도 UO_2의 열전도도를 다음과 같이 제안하였다.

$$K = \frac{100}{7.5408 + 17.692(T/1000) + 3.6142(T/1000)^2} + \frac{6400}{(T/1000)^{5/2}}\exp\left\{-\frac{16.35}{(T/1000)}\right\}$$

여기서, T 는 절대 온도이다.

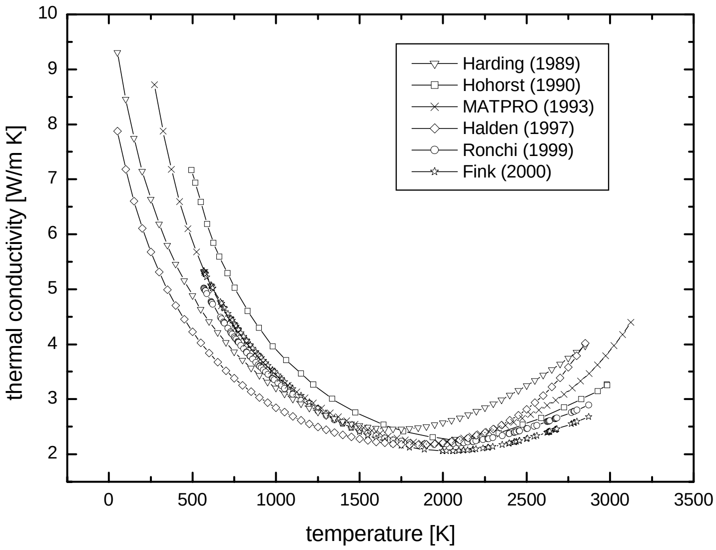

그림 3.1 1989년 이후 발표된 UO_2 열전도도 모델들

다. UO_2 열전도도 모델의 비교검증 및 평가

다음은 대표적인 UO_2 열전도도의 대표적인 모델들을 FRAPCON-3 코드에 이식하여 나온 결과를 비교한 것이다.

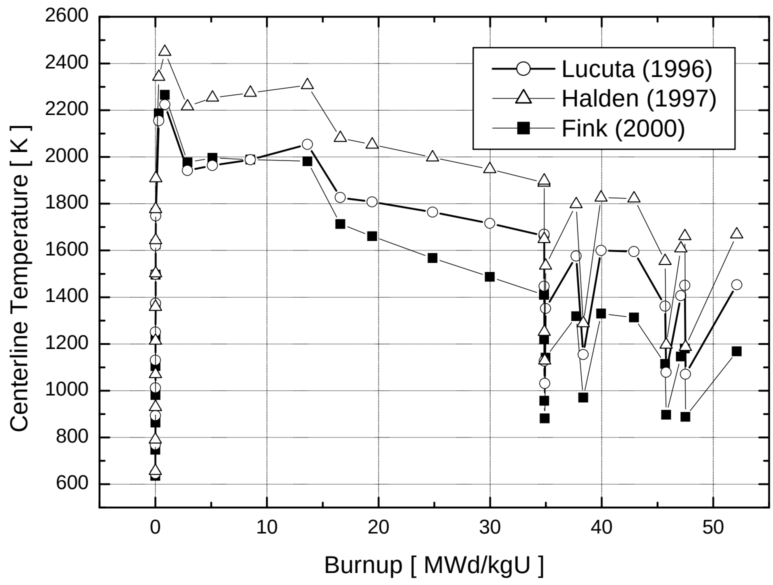

그림 3.2. BR-3 rod 111i5

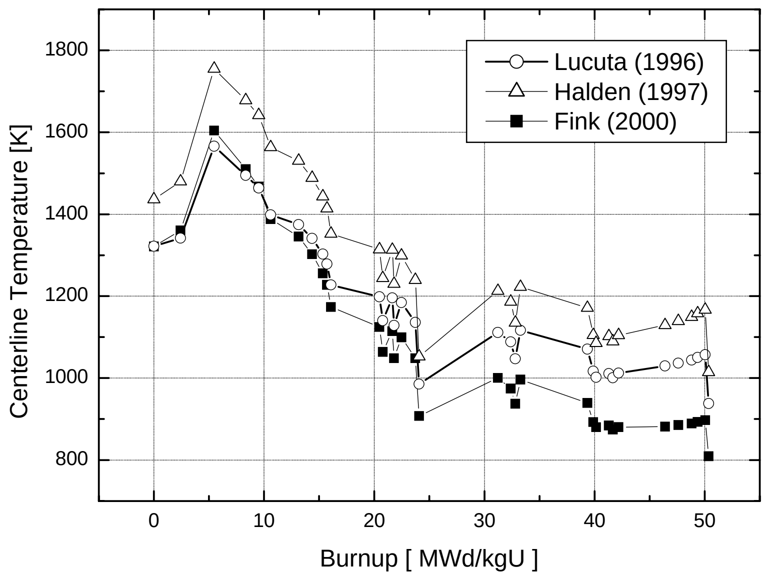

그림 3.3 Oconee rod 15309

연소도가 배제된 온도만의 열전도도 경우에도 각 연구자들의 모델마다 차이가 어느 정도 존재하고 있으며 연소도가 증가할수록 그 차이는 커져 50,000 MWd/MtU정도의 고연소도에서는 30%~40%정도에 이르고 있었다. 이러한 온도와 연소도에 따른 열전도도의 이러한 차이는 핵연료봉의 열적 성능에 결정적인 차이를 유발할 수 있는데 그림 3.2 에서 보듯이 선출력이 높게 운전된 BR-3 rod 111i5의 경우는 연소도가 40,000 MWD/MtU 에 이르면 UO_2 중심온도의 예측값 차이가 400℃에 이르고 있다. 두말할 것 없이 이러한 중심 온도의 큰 차이는 핵분열 생성기체

방출율과 봉내압 예측값의 차이를 유발하고 이는 피복관 creep, 부식 성장 등에도 결정적으로 영향을 미치게 된다.

실제 현재까지 가장 정교한 in-pile 실험으로 평가받고 있는 Halden 모델의 경우 이제까지 발표된 다른 모델들 보다 가장 낮은 열전도도 값을 나타내고 있으며 특히 연소도가 증가하면 그 차이는 점점 더 증가하게 된다. 따라서 UO_2 열전도도의 경우 좀 더 꾸준하고 다양한 in-pile 실험 결과와의 비교평가검증이 필요할 것으로 판단된다.

4. 결론

현재 국내외적으로 많은 원전 방식이 장주기 고연소 체제로 전환되고 있으며 핵연료 방출 연소도 70,000 MWd/MtU 달성을 위한 연구 개발이 경쟁적으로 이루어 지고 있다. 국내에서도 이미 신형 핵연료 개발과 같은 국가적 프로젝트가 진행되고 있으며 산업체와 학계에서의 관련 연구도 활발하게 진행되고 있다. 이러한 연구 개발이 성과를 들어내고 실제적으로 활용되기 위해서는 재료/소재의 개발, 설계기술 개발과 함께 고연소하에 핵연료봉의 노내거동을 정확하게 예측하고 평가할 수 있는 자료와 함께 평가 방법 등을 확보하는 것이 중요하다.

이 연구를 통해 독자적인 2단계 2영역 핵분열 생성 기체 방출 모델을 개발하였고 in-pile 실측자료와 비교/검증한 결과 정상상태 방출 모델은 저연소도와 고연소도 모든 구간에서 고르게 실험결과를 잘 예측하였다. 특히 고연소도로 갈수록 비교 대상인 ANS 5.4 모델이나 Forsberg-Massih 모델보다 실측값에 근사하였다. 그러나 이 과정에서 일부 in-pile 자료들의 경우 지적 소유권 등의 문제로 수집 자체가 어려워 입수 가능한 자료로만의 평가가 불가피하였다. 또한 천이상태 핵분열 생성 기체 방출 모델과 모델에 사용될 최적의 상수값에 대한 추가적인 연구가 이루어져야 하고 이에 대한 것도 in-pile 실험자료로 분석/평가 되야 할 것이다.

핵연료 소결체 열전도도의 경우 최근 열전도도 모델들을 수집/분석 및 코드에 이식하여 비교/검증을 하였다. 이 과정에서 가장 정교한 in-pile 실험으로 평가받고 있는 Halden 모델의 경우 이제까지 발표된 다른 모델들 보다 가장 낮은 열전도도 값을 나타내고 있으며 특히 연소도가 증가하면 그 차이는 점점 더 증가하였다. 따라서 UO_2 열전도도의 경우 좀 더 정밀하고 다양한 in-pile 실험 결과와의 비교평가검증이 필요할 것이다. 또한 이러한 연구를 통해서 국내 고효율 고연소 핵연료 개발의 경쟁력 확보를 위해 독자적이고 검증된 모델 개발을 추진중이다.

참고문헌

[1] J.K. Fink, M.G. Chasanov, L Leibowitz, "Thermophysical properties of uranium dioxide", J. Nucl. Mater. 102 (1981) 17

[2] J.K. Fink, “Review Thermophysical Properties of Uranium dioxide”, J. Nucl. Mater. 279 (2000) 1

[3] J.C Killeen , “Measurement of electron-to-hole mobility ratio in UO_2”, J. Nucl. Mater. 92 (1980) 136

[4] G.J Hyland, “Thermal conductivity of solid UO_2”, J. Nucl. Mater. 113 (1983) 125

[5] Hj. Matzke, “Oxygen Potential in the Rim Region of High Burn-up UO_2 Fuel” J. Nucl. Mater. 208 (1994) 18

[6] J.H. Harding , D. G. Martin, “A recommendation for the thermal conductivity of UO_2” J. Nucl. Mater. 166 (1989) 223

[7] P.G. Lucuta, Hj. Matzke, R.A. Verrall and H.A Tasman, J. Nucl. Mater 188 (1992) 198

[8] D. L. Hagrman “thermal conductivity (FTHCON)”

[9] J. H. Harding, D.G Martin "A Recommendation For The Thermal Conductivity of UO_2" J. Nucl. Mater 166 (1989) 223-226

[10] K. Forsberg and A. R. Massih, Diffusion Theory of Fission Gas Migration in Irradiated Nuclear Fuel UO_2, Journal of Nuclear Materials 135(1985) 140

[11] M. V. Speight and J. A. Turnbull, Enhanced Fission-Product Release by Grain-Boundary Diffusion, Journal of Nuclear Materials 68(1977) 244

[12] C. E. Beyer and C. R. Hann, Prediction of Fission Gas Release From UO_2 Fuel, BNWL-1875, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington, (1974)

[13] A. H. Booth, A Method of Calculating Fission Gas Diffusion from UO_2 Fuel, CRDC-721(1957)

[14] R. A. Lorenz, ANS-5.4 Fission Gas Model I. Noble Gases at High Temperature, ANS Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, (April ,1979) 321

[15] L. D. Noble, ANS-5.4 Fission Gas Model III. Low Temperature Release,ANS Topical Meeting on light Water Reactor Fuel Performance, (April ,1979) 336