2003 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

ISAAC 전산코드의 휘발성 핵분열생성물 방출 모델 평가

Volatile Fission Product Release Model Evaluation in ISAAC Code

송용만, 박수용
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

ISAAC 코드의 핵분열생성물 방출 계산은 Jaycor에 의해 개발된 FPRAT 상세모델에 기반하고 있는데, 노심으로부터 핵분열생성물의 방출은 핵연료봉에서의 핵분열생성물 방출률, 방출된 노심의 핵분열생성물을 일차계통으로 운반할 기체 유동, 및 화학적 열역학 평형에 의한 핵분열생성물 포화증기압에 의해 결정된다. 특히, 휘발성 핵분열생성물 방출율 계산과 관련하여는 Cubicciotti의 수증기에 의한 산화 상관식 또는 NUREG-0772 상관식이 사용되는데 사용자가 옵션으로 선택할 수 있다. 본 연구에서는 이러한 휘발성 핵분열생성물 방출모델에 대해 민감도 분석을 수행하였다. 민감도 분석 결과, 조기방출의 경우 IDCOR 모델의 노심내 방출가능 옵션을 선택하면 가장 보수적인 계산결과를 초래하고, 후기방출의 경우 NUREG-0772 모델을 선택하면 가장 보수적인 계산결과를 초래하며, IDCOR 모델의 노심내 방출제한 옵션을 사용하면 조기 및 후기방출시 보수성이 완화된 계산결과를 보이는 것으로 평가되었다.

Abstract

The ISAAC fission product release calculation is based on the detailed FPRAT models developed by Jaycor and the release of these materials from the core is governed by the release rate of fission products from the fuel matrix, the ability of the gas flow from the core to carry these materials to the rest of the primary system, and the saturated vapor pressure of fission product species given by chemical thermodynamic equilibrium. For volatile fission product release calculation, either Cubicciotti steam oxidation correlation or the NUREG-0772 correlation is used as user' s options. In this study, sensitivity analyses are made for these volatile fission product release models. As the results, in case of early release, the IDCOR model with an in-vessel Te release option shows the most conservative results and for the late release case, NUREG-0772 model shows the most conservative results. Considering both early and late release, the IDCOR model with an in-vessel Te bound option is evaluated to show mitigated conservative results.

1. 서론

1990년대 중반에 월성2/3/4호기의 2단계 PSA 수행시 CANDU 고유의 중대사고 현상을 모의하기 위하여 한국원자력연구소 (KAERI)와 FAI (Fauske & Associates, Inc.)가 약 1년동안 공동으로 ISAAC 전산코드 [1]를 개발하였다. 그러나 짧은 개발기간 및 부족한 사용경험으로 인해 코드의 모델에 대한 평가가 충분히 이루어지지 못하였다. 따라서 본 연구에서는 여러가지 모델중 최근 관심분야로 부각된 핵분열생성물 (이하 "FP"로 명명) 모델에 대한 연구를 수행하여 코드에 대한 이해의 폭을 넓히려 한다. 이를 위해 ISAAC의 휘발성 FP의 방출 (Volatile Fission Product Release) 모델을 주로 방출량의 관점에서 분석.평가하였다. 평가방안으로 개별 모델에 대한 내용 분석과 모델 평가를 동시에 수행했으며, 모델평가는 불확실 변수 또는 사용자 옵션에 대한 민감도 계산결과를 이용하는 연구전략을 사용하였다.

ISAAC 코드의 핵분열생성물 방출 계산은 Cubicciotti의 수증기에 의한 산화 역학식 [2] 또는 NUREG-0772 상관 경험식 [3]이 사용되는데 사용자가 옵션으로 선택할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 두가지 휘발성 FP 방출 모델간의 결과 차이를 우선 분석하였다. 그리고 IDCOR 해석 모델의 경우, 노심내 유로제한 (blockage)의 영향 여부를 살펴보았다. 한편, 지금까지 알려진 바에 의하면 Te 핵종은 피복재에 Telluride로서 묶여 방출되지 않을 수 있다. 이러한 현상은 Zr의 산화율이 70-90% 이하인 실험들에서 발견되었으며, 이 경우에 Te는 휘발성 핵종의 거동을 보이지 않는다. 따라서 이러한 현상을 ISAAC 코드에서 제공되는 노심내 Te 방출제한에 대한 사용자 옵션 (IDCOR 모델은 "FTEREL"옵션, N-0772 모델은 "FTENUR"옵션)을 사용하여 분석하였다.

2. ISAAC 모델

ISAAC 코드의 핵분열생성물 방출 계산은 Jaycor에 의해 개발된 FPRAT 상세모델 [4]에 기반하고 있는데, 휘발성 FP 방출율 계산과 관련하여는 Cubicciotti의 수증기에 의한 산화 상관식 또는 NUREG-0772 상관식이 사용되는데 사용자가 옵션으로 선택할 수 있다. 그리고 ISAAC 코드에서는 경수로 중대사고 해석코드인 MAAP 코드에서 취급되는 12가지의 핵종 (Xe,Kr/CsI/TeO2/SrO/MoO2/CsOH/BaO/La2O3/CeO2/Sb/Te2/UO2/H3)과 더불어 삼중수소 (Tritium)가 추적된다. 그러나 삼중수소는 칼랜드리아 탱크내의 중수에서만 생성되므로 노심으로부터 추적되는 핵종에는 포함되지 않는다. 따라서 노심으로부터 추적되는 휘발성 FP는 Xe, Kr, Cs, I, 및 Te 핵종이다. 코드에서 휘발성 핵분열 생성물의 방출과 관련해 사용된 주요가정은 다음과 같다:

1. 핵분열생성물은 핵연료 피복재의 손상시 방출을 시작한다. 여기서 피복재의 손상은 부풀음 (ballooning)에 의한 파손 또는 사용자 입력인 손상온도 기준에 의해 결정된다.

2. 노심내에서 에어로졸의 형성 및 침착은 발생하지 않는다. 또한 13개 핵종군 이외의 핵종 및 우라늄(UO2)핵종의 노심방출은 모의하지 않는다. 그리고 휘발성 핵종의 방출은 방출 관계식에 의해서만 결정되며 이송질량의 제한은 없다.
3. Te 핵종은 사용자의 옵션선택에 의해 피복재에 Telluride로서 묶여 방출되지 않을 수 있다.

Cubicciotti의 수증기에 의한 산화 상관식 (IDCOR/EPRI 증기산화 모델)에서는 핵분열 가스 및 휘발성 FP의 방출은 UO_2가 수증기내에서 가열시 핵연료의 산화 역학(Kinetics)에 상관된다는 가정을 사용한다. 이러한 가정하에 원통형 펠렛에서의 확산에 대한 근사치가 시간과 온도의 함수로서 휘발성 FP의 방출을 예측하는데 직접 사용된다. 이를 식으로 표시하면 다음과 같다:

$$F = 1 \quad 1[1-4(\tau_h/\pi)^{1/2}] \; [1 - 4(\tau_\theta/\pi)^{1/2} + \tau_\theta]$$

여기서, F = 휘발성 FP의 방출 분율,

τ_h = $D_c t/h^2$, τ_θ = $D_c t/r^2$,

h = 핵연료 펠렛 높이 (h), r = 핵연료 펠렛 반경 (r) (m),

t = 시간 (초), 그리고

D_c = UO_2 내부로 산화체 (oxidant)의 침투정도를 표시하는 화학적 확산상수이다.

한편, 수증기내 에서의 UO_2에 대한 확산상수는 온도(K)에 관한 다음 식으로 계산된다.

$$D_c \; (m^2/s) = 9.9 \times 10^{-3} \; e^{(-28600/T)}$$

이와는 다르게 NUREG-0772 상관식 (경험적 상관식)은 넓은 온도범위에서 휘발성 FP에 적용가능한 실험식이다. 이는 저자가 이용가능한 FP 방출 데이터를 조사하고 이로부터 온도에 따른 FP 방출율을 일군의 피팅 그래프로 도출한 것이다. 이러한 그래프는 아래의 함수 형태로 근사되었다.

$$k(T) = A \; e^{BT}$$

여기서, k(T)는 방출분율 상수로서 온도만의 함수이며, T는 온도[°C] 이고, A,B는 핵종 및 온도에 따라 아래의 표처럼 주어지는 상수이다.

FP	1000°C < T < 2200°C		T > 2200°C	
	A	B	A	B
Xe, I, Cs	1.65×10^{-7}	0.00667	1.89×10^{-5}	0.00451
Te	2.96×10^{-8}	0.00667	1.17×10^{-5}	0.00404

3. 계산 사고 경위

참조사고는 대형냉각재상실사고후 완전급수상실을 포함한 극한의 조건 (bounding conditions)을 부여하였다. 초기조건으로 원자로 출구모관 (Reactor Outlet Header)에서 대형파단 (=0.2594 m^2)이 발생하였고, 비상안전주입계통과 감속재 및 쉴드 냉각계통, 격납건물 살수계통, 그리고 국부공기냉각기등 대부분의 안전계통은 작동불능으로 가정하였다. 증기발생기의 주급수 계통은 원자로의 정지시점 (=0.87초)까지 가동되나, 정지후에는 보조급수계통의 고장을 가정하여 완전급수상실을 가정하였다. 원자로의 정지시점은 FSAR에서 계산된 결과를 이용하여 0.87초에 수동 정지하도록 했다. 그리고 1차 계통에서 발생되는 파단 사고의 경우 비상 노심 냉각 계통을 일찍 작동시키기 위해 증기발생기의 안전밸브 (MSSV)를 열어 2차 계통을 급속하게 냉각 (crash cooldown)시키도록 하고 있다. 이를 모의하기 위하여 LOCA 신호가 접수되고 30초 후에 MSSV가 열리고, 계속 열린 상태를 유지하도록 하였다. 또한 LOCA 신호가 발생하면 가압기로 연결되어 있는 두 개의 폐회로는 가압기 격리 밸브를 잠금으로 서로 격리되도록 하였다. 이 사고의 경우, LOCA 신호는 1차 계통의 압력이 5.56 MPa 이하로 감소하는 3.3초에 발생하며, 가압기 격리밸브는 약 23초에 닫히고, 약 33초에 MSSV는 개방된다. 참조사고시 상세 사고진행 및 열수력 해석결과는 참고문헌 [5]을 참조하면 된다.

4. 방사선원항 분석 결과

계산결과에 의하면 휘발성 핵종은 핵연료의 피복재 파손이후 방출되기 시작하여 핵연료관 파손이후 감속재에 떨어져 냉각되기 이전까지 조기 방출 (early release)을 계속한다. 이후 방출이 정지되었다가 칼랜드리아 탱크 파손이후 칼랜드리아 볼트에서 노심용융물-콘크리트 반응 (MCCI)이 시작되면 후기 방출 (late release)을 시작한다. 민감도 분석은 휘발성 대표핵종인 CsI 와 Zr 산화율 (후기방출 직전 Zr 산화율=75%)에 큰 영향을 받는 Te 핵종에 대해 수행되었다. 조기방출이 완료되고 격납건물의 파손가능성이 높은 (칼랜드리아 탱크내 노심용융물이 칼랜드리아 볼트내의 냉각수로 떨어져 증기spike가 발생하므로) 시점인 칼랜드리아 탱크 파손시점과 계산종료시점 (사고시작후 3일)에서의 격납건물내

(대기+침적+냉각수조) 누적분율을 민감도 계산 옵션별로 <표.1>에 정리하였고 <그림.1> 및 <그림.2>에 CsI 및 Te의 시간에 따른 누적분율을 각각 보였다.

두 가지 모델의 CsI 방출 특성의 분석 결과, CsI 조기방출은 IDCOR 모델 (그림에서 "ID")이 매우 많았고 (약 5배) 후기방출은 NUREG-0772 모델 (그림에서 "07") 경우가 매우 급격히 발생하여 사고 3일째 누적분율은 오히려 약 1.5배 많았다 (<그림.1> 참조). 주요한 방출은 핵연료의 용융온도에서 발생하는데 IDCOR 모델의 방출율이 용융온도 근처에서 민감하게 변화되는 것으로 예상된다. NUREG-0772 실험 상관식은 핵연료가 1000℃ 이상에 도달하면 FP가 방출되기 시작하여 용융온도인 2200℃ 이상까지 온도에 따라 지수승 (exponentially)으로 방출율이 증가하는데 1700℃-1800℃ 근처에서 1-2%의 방출률을 보인다. Te 방출의 경우, IDCOR 모델중 노심내 방출제한 옵션 (FTEREL=0, 그림에서 "B")이 선택되지 않은 경우는 상당량 (약 20%)이 조기에 방출되었으나 NUREG-0772 모델 및 IDCOR 모델중 노심내 방출제한 옵션이 선택된 경우는 조기방출이 발생하지 않았다. 그리고 사고 3일째 누적분율은 NUREG-0772 모델, IDCOR 모델중 노심내 방출가능 옵션 (FTEREL=1, 그림에서 "R"), 및 IDCOR 모델중 노심내 방출제한 옵션 순으로 약간씩 많았다 (<그림.2> 참조). 한편 중수로의 노심 특성상 노심용융물의 candling에 의한 blockage 현상 (그림에서 "C"(=candling) 및 "NC"(=no candling))은 이 현상의 불확실성 때문에 고려되지 않아 경수로와 다르게 노심내 유로제한 (blockage)의 영향은 IDCOR 모델에서도 거의 나타나지 않았으며, NUREG-0772 모델의 Te 노심내 방출제한을 완화하여도 조기방출은 거의 나타나지 않았다.

다음으로 휘발성 핵종중 CsI의 위치별 분포를 분석하였다. 이를 위해 핵연료관 내부 (노심용융물), 핵연료관 외부 (노심용융물), 파단폐회로 내부, 건전폐회로 내부, 칼랜드리아 탱크 내부 (노심용융물), 및 격납건물 (칼랜드리아 볼트 포함, 대기/침적/냉각수조 및 노심용융물pool) 내부의 CsI 분율 (초기량에 대한)을 <그림.3>, <그림.4>, <그림.5>, <그림.6>, <그림.7>, 및 <그림.8>에 각각 표시하였다. 이에 의하면 핵연료관 내부의 핵연료는 용융 및 핵연료관의 파손에 따라 10시간 이내에 거의 모두 칼랜드리아 탱크로 이송되며 이에 따라 노심용융물내 CsI는 (사용자 선택모델 옵션에 따라) 25%-80%가 칼랜드리아 탱크로 이송되고 방출된 CsI는 파단 및 건전 폐회로 내부에 10%-25% 및 7%-30%의 CsI가 잔류한다. 칼랜드리아 탱크로 이송된 CsI는 노심용융물 내부에 존재하며 칼랜드리아 탱크 파손시 격납건물 (즉, 칼랜드리아 볼트)로 전부 이송되어 칼랜드리아 탱크 내부에는 잔류량이 거의 없다. 한편, 격납건물 내부에는 냉각재 파단부위를 통해 사고초기에 누출된 (사용자 옵션에 따라) 4%-20%의 CsI가 존재하며 <그림.1>에서 알 수 있듯이 MCCI 반응시작후 급격히 증가한다. 다음으로 사용자 옵션별 NUREG-0772 모델 (07-C-R-90) 및 IDCOR 모델 (ID-C-R-90)

대표사고시 위치별 CsI의 분포(분율)를 <그림.9> 및 <그림.10>에 각각 표시하였다. 이에 의하면, 사고가 진행되어 칼랜드리아 볼트내에서 MCCI 반응이 시작되면 노심용융물 내부(25%-80%)의 CsI는 급격히 방출되어 사고시작후 50여시간에는 격납대기(및 냉각수조)와 노심용융물 내부의 CsI 양이 거의 비슷해진다. 이후 격납대기(및 냉각수조)의 양은 늘고 노심용융물 내부의 양은 줄어 사고시작 3일후에는 칼랜드리아 볼트내 노심용융물 내부에는 약 15%-40%의 CsI가 잔류한다. 한편, 본 분석에서는 격납건물내 대기 및 냉각수조에 존재하는 CsI의 양을 분리하여 추적하지 못하고 있으며 이는 추후 분석이 필요하다 (격납건물 실패시 외부환경으로의 방출량은 격납건물의 대기내의 핵분열 생성물의 양에 비례하기 때문이다).

다음으로 사용자 옵션별 NUREG-0772 모델 (07-C-R-90) 및 IDCOR 모델 (ID-C-R-90) 대표사고시 위치별 Te/TeO_2 분포(질량)를 <그림.11> 및 <그림.12>에 각각 표시하였다. 이에 의하면, NUREG-0772 모델의 경우, 칼랜드리아 볼트에서의 MCCI 반응이후에 Te는 TeO_2의 형태로 급격히 방출되기 시작하는 반면, IDCOR 모델 (노심내 방출 옵션)의 경우, 노심에서 상당량이 TeO_2의 형태로 방출되어 일차계통 및 격납건물에 잔류하며 MCCI 반응이후에는 NUREG-0772 모델에 비해 방출률이 작은 것을 알 수 있다.

5. 결론

이상의 분석에서 CsI 조기방출은 IDCOR 모델이 매우 보수적으로 계산하는 것으로 평가된다. Te의 경우는, IDCOR 모델에서 노심내 방출제한 옵션이 선택되면 NUREG-0772 모델과 마찬가지로 Te핵종은 조기방출이 이루어지지 않고 노심에 남아 노심온도 상승시 붕괴열을 제공하며 노심 재배치시에 Zr과 함께 이송된다. 이후 MCCI 반응시 Zr이 급격히 산화되면 Te의 후기방출이 이루어지게 된다. 그리고 CsI 후기방출은 NUREG-0772 모델이 매우 보수적으로 계산하는 것으로 평가된다. Te의 경우는 NUREG-0772 모델과 IDCOR 모델의 노심내 방출제한 경우가 보수적으로 계산되는데 이중 NUREG-0772 모델이 후기방출 시작시점이 약간 빠르고 방출률도 약간 큰 것으로 평가된다. 따라서 휘발성 핵종의 조기방출의 경우 IDCOR 모델의 노심내 방출가능 (FTEREL=1) 옵션을 선택하면 가장 보수적인 계산결과를 초래하며, 후기방출의 경우 NUREG-0772 모델을 선택하면 가장 보수적인 계산결과를 초래한다. 이에 반해 IDCOR 모델의 노심내 방출제한 (FTEREL=0) 옵션을 사용하면 조기 및 후기방출시 보수성이 완화된 계산결과가 예상된다

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

1. 한국원자력연구소(1995), 가압중수로형 원자력발전소의 2단계 PSA를 위한 ISAAC 전산코드 개발.
2. Industry Degraded Core Rulemaking Program(1983), Analysis of In-Vessel Core Melt Progression, IDCOR Report 15.1B.
3. USNRC(1981), Technical Bases for Estimating Fission Product Behavior During LWR Accidents, NUREG-0772.
4. KAERI(1995), MAAP-WS: Severe Accident Program for Wolsong Plant, FAI/95-76.
5. 김시달(2002), 월성발전소의 대형 냉각재 상실사고에서의 국부공기 냉각기와 격납건물 살수의 영향, KAERI/TR-2350/2002.

표 1 휘발성 FP 방출모델별 격납건물내 FP 누적분율

■ LLOCA 경위시 격납건물내 누적분율 (MFPCOT/MFP0) ➢ CT 파손 = 140000여초(IDCOR) 120000여초(NUREG-0772) ➢ CCI직전(=40hr) (total) Zr 산화율 = 75%			IDCOR Model (산화역학식)				NUREG-0772 Model (경험/실험상관식)	
			Blockage allowed (ICANDL=0)		No Blockage allowed (ICANDL=1)		Blockage=N/A	
			CsI [%]	TeO_2 [%]	CsI [%]	TeO_2 [%]	CsI [%]	TeO_2 [%]
ZrO_2 Limit (FTENUR) =90%	In-Vessel Te bounded (FTEREL=0)	CT파손 직후	20.7	0.0	22.4	0.0	5.0	0.0
		사고3일째	30.9	22.8	32.7	23.3	44.5	30.9
	In-Vessel Te released (FTEREL=1)	CT파손 직후	22.3	22.3	22.3	22.3	FTEREL=0 와 동일	
		사고3일째	32.1	27.8	32.2	27.8		
ZrO_2 Limit (FTENUR) =70%	FTEREL=N/A	CT파손 직후	N/A				4.9	0.0
		사고3일째					44.5	30.9
ZrO_2 Limit (FTENUR) =1%	FTEREL=N/A	CT파손 직후					4.8	0.7
		사고3일째					44.2	30.6

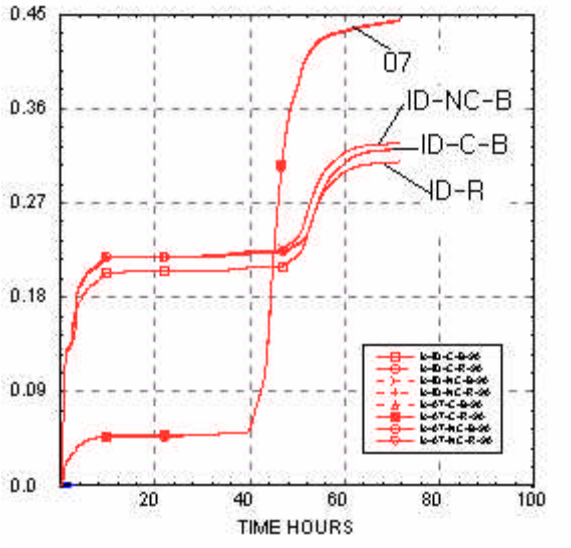

그림 1 방출모델별 격납건물내 CsI 누적율

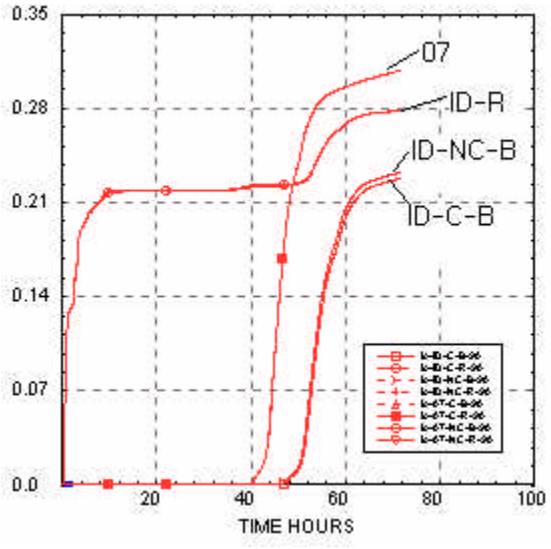

그림 2 방출모델별 격납건물내 $Te0_2$ 누적율

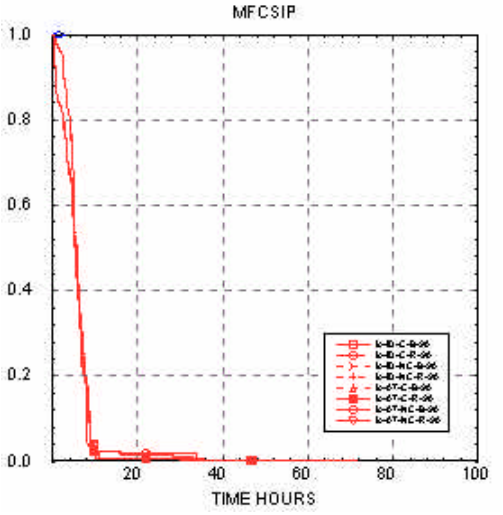

그림 3 핵연료관 내부 CsI 잔류분율

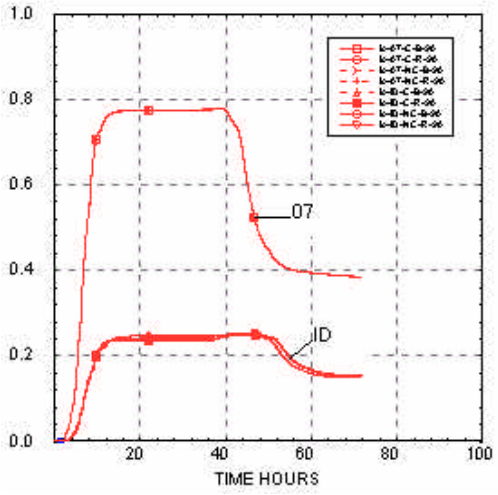

그림 4 핵연료관 외부의 노심용융물내 CsI 누적분율

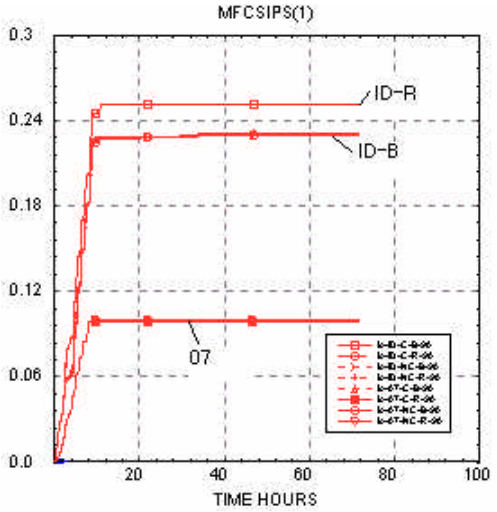

그림 5 파단 폐회로 내부 CsI 잔류분율

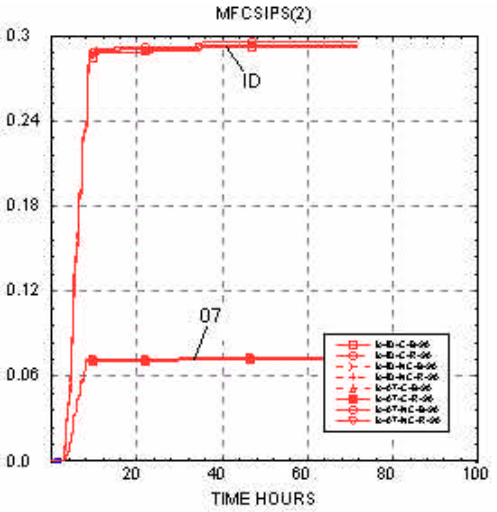

그림 6 건전 폐회로 내부 CsI 잔류분율

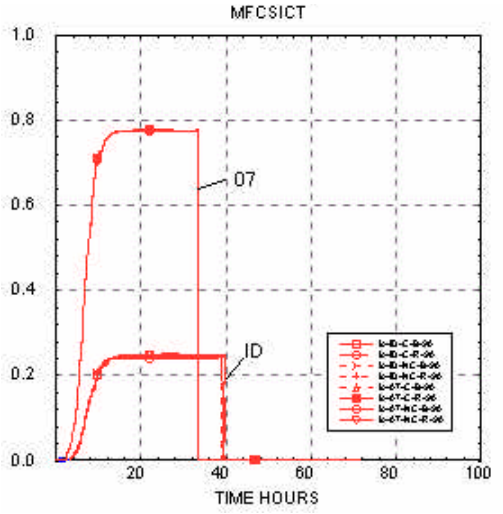

그림 7 칼랜드리아 탱크 내부 CsI 잔류분율

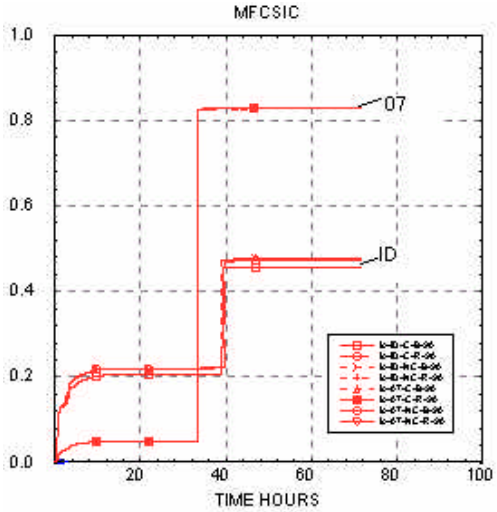

그림8 격납건물내(노심용융물pool 포함) CsI 누적분율

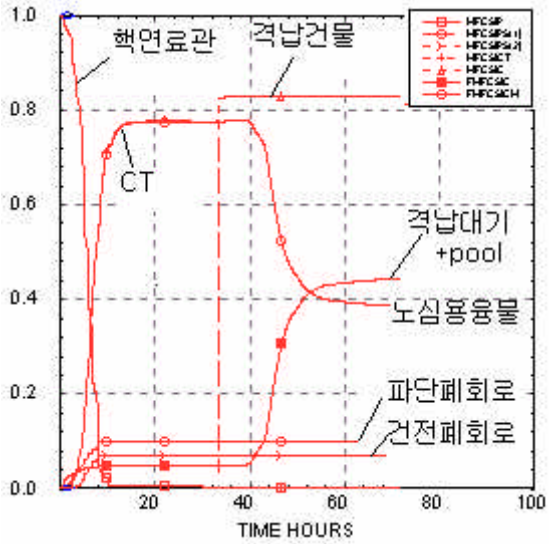

그림 9 NUREG-0772 경우(07-C-R-90),
위치별 분포된 CsI 누적분율

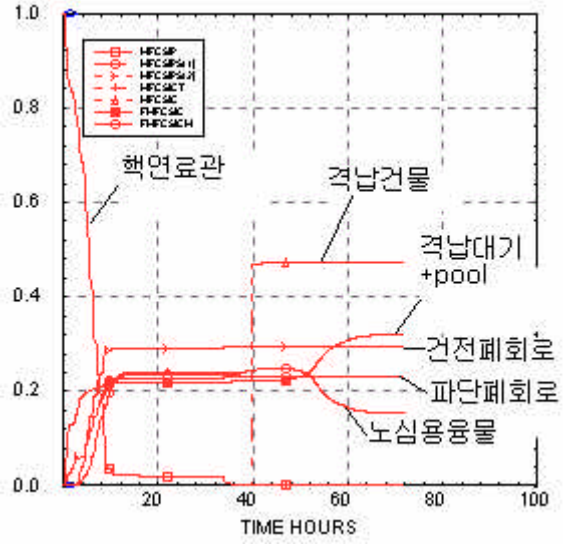

그림10 IDCOR 경우(ID-C-R-90),
위치별 분포된 CsI 누적분율

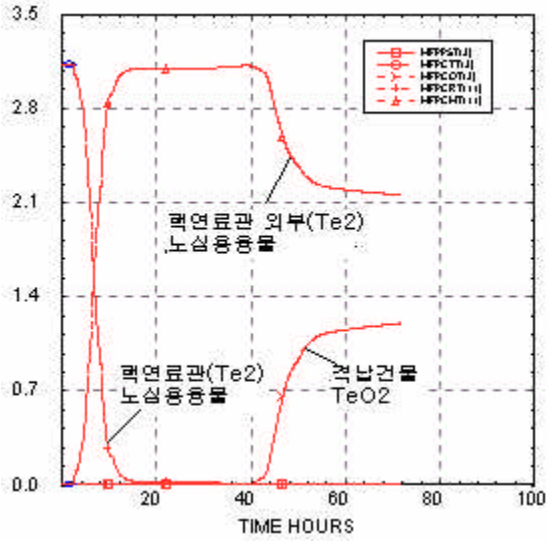

그림 11 NUREG-0772 경우(07-C-R-90),
위치별 분포된 Te/TeO_2 누적질량[Kg]

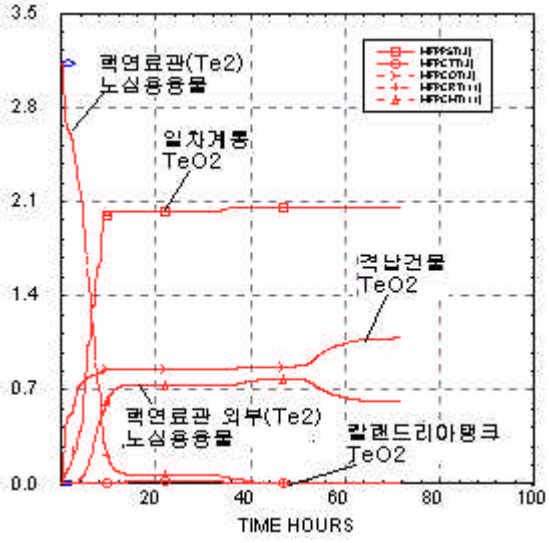

그림12 IDCOR 경우(ID-C-R-90),
위치별 분포된 Te/TeO_2 누적질량[Kg]