

ThO₂-UO₂ 핵연료 핵분열 기체 방출 거동 평가 (Fission Gas Release Behavior Analysis of ThO₂-UO₂ Fuel)

양용식, 이찬복, 방제건, 김대호, 김영민, 정연호

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 사서함 105호 305-600

요 약

ThO₂-UO₂ 핵연료의 성능 평가를 위해 UO₂ 핵연료용 성능 평가 코드인 INFRA로 부터 소결체 열전도도, 반경방향 출력 및 연소도 분포, 소결체 열팽창 모델 등을 수정하여 INFRA-Th 버전을 개발하였다. INFRA-Th를 이용하여 LWBR(Light Water Breed Reactor) 프로그램에 의해 수행된 토륨 핵연료 핵분열 기체 방출 실험 결과를 분석하였다. 평가 결과, 일부 실험 자료는 낮은 연소도까지 실험이 수행되어 핵분열 기체 방출량이 매우 적었다. 핵분열기체 방출량이 큰 경우에는 핵연료의 온도가 매우 높아서 결정립 성장이 발생하였으며, 결정립 성장이 발생한 영역에서는 대부분의 핵분열기체가 방출되었기 때문에, 기존의 확산에 기초한 핵분열기체방출모델을 적용에는 한계가 있었다.

Abstract

For the in-pile performance analysis of thoria-urania fuel, INFRA-Th version was developed by adding the pellet thermal conductivity, pellet radial power and burnup distribution, and fuel thermal expansion models for ThO₂-UO₂ fuel to INFRA of UO₂ performance analysis code. By using INFRA-Th, fission gas release data base of ThO₂-UO₂ fuels which are produced by LWBR program is analyzed. Some of data gives low fission gas release due to relatively low burnup, so that mechanistic analysis of fission gas release by diffusion was not possible. In case of high fission gas release data, most of fission gas release came from the region where grain growth had occurred due to very high temperature irradiation. Therefore, it was not possible to apply conventional diffusional fission gas release model for those data with grain growth.

1. 서 론

경수로용 핵연료로서 ThO₂-UO₂ 핵연료는 풍부한 매장량의 토륨 자원을 활용하는 경제성 및 핵비확산성 뿐만 아니라 우수한 노내 성능에 대한 연구 결과가 보고되고 있다[1] ThO₂-UO₂ 핵연료의 성능 평가 코드는 기존의 UO₂ 핵연료와 비교하여 소결체의 화학적 조성 외에는 설계가 동일하기 때문에 토륨의 물성치 및 일부 성능 모델의 개선을 통하여 기존의 UO₂ 성능 평가 코드를 활용할 수 있다. UO₂ 핵연료 성능 평가 코드로서 개발된

INFRA(Integrated Fuel Rod Analysis)[2]를 토륨 핵연료에 대한 평가를 할 수 있도록 수정하여 LWBR (Light Water Breed Reactor) 핵연료 개발 프로그램에서 수행된 ThO₂-UO₂ 핵연료 핵분열 기체 방출 실험에 대한 자료[7]를 분석하였다.

2. INFRA-Th 개발

LWBR 프로그램은 출력이력, 설계 조건등에 따른 ThO₂-UO₂ 핵연료의 핵분열 기체 방출 거동을 알아 보기 위한 실험으로서 51개의 핵연료봉을 대상으로 실험이 수행되었다. 여기서는 ThO₂와 UO₂가 균질(homogeneous)하게 혼합된 5개의 핵연료 실험 자료를 평가하였다 [3]. 앞에서 언급한 바와 같이 토륨 함유 핵연료의 성능 평가는 기존의 UO₂ 핵연료 성능 평가 코드에서 소결체 관련 물성치 및 성능 모델들을 변경하여 직접 사용할 수 있으며 특히, LWBR 실험자료는 핵분열 기체 방출 거동 실험으로서 이에 직접적인 영향을 끼치는 성능 모델 및 물성치를 수정하였다.

2.1 소결체 열전도도 모델

핵연료 소결체의 열전도도 모델은 핵연료의 온도 및 핵분열 기체 방출량을 결정하는 중요한 인자이다. 조사되지 않은 ThO₂-UO₂ 핵연료의 열전도도는 UO₂의 함량이 0 ~30%인 범위에서 다음과 같이 알려져 있다[4].

$$K_{Th/U}^M = \frac{1}{A(M) + B(M) \cdot T}$$

여기서

$$A(M) = \frac{1}{A_0 + A_1 \cdot M}$$

$$B(M) = B_0 + B_1 \cdot M + B_2 \cdot M^2$$

M = UO₂ mole fraction

$$A_0=46.948, A_1=-112.072, B_0=1.597 \times 10^{-4}, B_1=6.736 \times 10^{-4}, B_2=-2.156 \times 10^{-3}$$

이다.

INFRA-Th에서 ThO₂-UO₂의 열전도도 모델은 위에서 계산된 비조사 값에 노내 조사에 의한 연소도의 증가, porosity의 변화, 핵분열 생성물, irradiation damage등에 의해 발생하는 열전도도의 변화를 UO₂ 핵연료와 같이 변화는 것으로 가정하였다.

2.2 소결체 열팽창 모델

소결체의 열팽창은 고밀화(densification), 팽윤(swelling), 재배치(relocation) 현상과 함께 소결체/피복관 겹의 크기를 변화시키는 중요한 요소이며 겹의 열전도도에 영향을 끼쳐 핵연료의 온도에 영향을 끼치게 된다. 그러나 ThO₂-UO₂ 핵연료의 고밀화, 팽윤, 재배치 현상은 UO₂ 핵연료와 큰 차이를 나타내지 않기 때문에 일반적인 UO₂ 핵연료의 성능 모델을 그대로 사용하였다. ThO₂-UO₂ 혼합 핵연료의 열팽창은 UO₂ 핵연료의 열팽창식과 ThO₂ 핵연료의 열팽창 식을 이용하여 다음과 같이 구할 수 있다.

UO₂의 열팽창식은 다음과 같이 주어진다[5]

$$\frac{\Delta L}{L_0} = K_1 T - K_2 + K_3 e^{-\frac{E_D}{kT}}$$

여기서

$$\frac{\Delta L}{L_0} = \text{linear strain caused by thermal expansion (equal to 0 at 300K)}$$

T = temperature (K)

E_D = energy of formation of a defect (J)

k = Boltzmann's constant (1.38×10⁻²³ J/K)

K₁=1.0×10⁻⁵, K₂=3.0×10⁻³, K₃=4.0×10⁻², E_D=6.9×10⁻²⁰

ThO₂의 열팽창을 다음과 같다[4].

$$\% \frac{\Delta L}{L} = -0.2426 + 7.837 \times 10^{-4} T + 9.995 \times 10^{-8} T^2, \quad T=K$$

따라서 Vegard's law를 적용하면 ThO₂-UO₂의 열팽창은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\left(\frac{\Delta L}{L_0} \right)_{ThO_2-UO_2} = \text{Frac}_{UO_2} \cdot \frac{\Delta L}{L}_{UO_2} + \text{Frac}_{ThO_2} \cdot \frac{\Delta L}{L}_{ThO_2}$$

그림 1에는 온도에 따른 UO₂와 70% ThO₂-30% UO₂, 그리고 100% ThO₂의 열팽창 예측치가 나타나 있다.

2.3 핵연료 반경방향 출력 분포 계산

핵연료 반경방향으로의 핵분열 밀도 및 생성 핵종들의 변화로 인해 운전중인 핵연료의 반경방향 출력 및 연소도 분포는 변화를 일으키게 된다. 특히 소결체 가장자리에서는 U-238의 중성자 흡수로 생성된 Pu-239의 축적으로 인해 국부적인 연소도가 급격히 증가하게 되어 Rim 영역을 생성하게 된다. 그러나 ThO₂-UO₂ 핵연료는 UO₂ 핵연료에 비해 U-238의 함량이 적기 때문에 생성되는 Pu 핵종의 양이 적어서 소결체 가장자리에서 출력 및 연소도가 국부적으로 증가하는 현상이 줄어들게 된다. 따라서 INFRA에서 사용하던 UO₂ 핵연료 반경방향 출력 및 연소도 예측 모델을 수정하여, ThO₂-UO₂ 핵연료의 모델을 사용하였으며 연소도와 반경 방향 거리에 따른 출력 및 연소도의 변화는 다음과 같다[6].

$$\begin{aligned} \text{power (rrth,bub)} = & -6.6837 + 0.267*\text{bub} -4.2542\text{e-}6*\text{bub}**2 \\ & + (3.2032-0.0655*\text{bub}+2.8175\text{e-}4*\text{bub}**2)*\text{rrth} \\ & - (16.422+0.0368*\text{bub}+1.4236\text{e-}3*\text{bub}**2)*\text{rrth}**2 \\ & + (25.0378+0.073*\text{bub}+2.4776\text{e-}3*\text{bub}**2)*\text{rrth}**3 \\ & - (22.1305+0.192*\text{bub}+1.4009\text{e-}3*\text{bub}**2)*\text{rrth}**4 \\ & + (11.5112+0.2137*\text{bub})*\text{exp}(-3.8935*(1-\text{rrth})) \\ & + (6.5873-0.2481*\text{bub})*\text{exp}(0.0977*(1-\text{rrth})**2) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{burnup}(\text{rrth}, \text{bub}) = & -16.8254 + 0.6736 * \text{bub} - 9.7069 \text{e-}6 * \text{bub} ** 2 \\ & - (2.5298 + 0.2733 * \text{bub} - 2.4955 \text{e-}4 * \text{bub} ** 2) * \text{rrth} \\ & - (30.5319 + 0.0656 * \text{bub} + 1.0935 \text{e-}3 * \text{bub} ** 2) * \text{rrth} ** 2 \\ & + (23.4042 - 0.0579 * \text{bub} + 1.713 \text{e-}3 * \text{bub} ** 2) * \text{rrth} ** 3 \\ & - (32.4645 + 0.239 * \text{bub} + 8.8522 \text{e-}4 * \text{bub} ** 2) * \text{rrth} ** 4 \\ & + (47.2434 + 0.6145 * \text{bub}) * \exp(-2.6379 * (1 - \text{rrth})) \\ & + (12.7968 - 0.646 * \text{bub}) * \exp(0.1058 * (1 - \text{rrth}) ** 2) \end{aligned}$$

여기서

rrth = normalized radius

bub = 소결체 평균연소도 (MWd/kgHM)

이다.

그림 2에는 UO_2 와 $\text{ThO}_2\text{-UO}_2$ 의 핵연료 반경방향 연소도의 분포가 나타나 있다.

2.4 핵분열 기체 방출 모델

INFRA에 사용되고 있는 핵분열 기체 방출 모델은 그림 3과 같은 구조로서 되어 있다. 결정립내에서 생성된 핵분열 기체가 결정립 경계면까지 도달하는 1차 경로는 확산 방정식에 의하여 계산된다. 결정립 경계면에 도달한 핵분열 기체는 거기서 기포를 형성하는데, 일정한 임계농도 이상이 되면 기포들이 상호 연결되어 외부로 방출된다. 여기서 핵분열 기체가 임계 농도에 미치지 못하지 못할 경우에는, 확산 기구가 아니라, 소결체의 재배치 및 recoil release 등에 의해 작은 량의 핵분열기체가 방출되는 것이 별도로 고려되는데 이는 다음과 같은 식으로서 나타낼 수 있다.

$$\text{Low FGR (fraction)} = 7.0 \times \text{e-}8 * \text{burnup}$$

여기서 burnup = MWd/mtU 이다

그림 4는 UO_2 핵연료의 핵분열 기체 방출 측정 자료들과 INFRA의 핵분열 기체 방출 모델의 예측치를 나타낸 것으로서 UO_2 핵연료 경우 고연소도까지 실측치와 잘 일치하는 것을 알 수 있다.

3. 결과 및 논의

LWNR의 5개의 $\text{ThO}_2\text{-UO}_2$ 핵연료 핵분열기체방출 시험자료는 출력 이력 및 최종 연소도는 표 1과 같은데, 크게 두 그룹으로 나눌 수 있으며 서로 다른 거동을 보이는 것으로 나타났다. 79-442, 79-506 핵연료봉은 상대적으로 낮은 출력에서 연소되었으며 rod peak 연소도도 각각 45, 21 MWd/kgHM 까지 도달하였으나 79-349, 79-375, 79-405 핵연료봉은 매우 높은 출력으로 11 MWd/kgHM 이하까지 연소되었다. 따라서 핵분열 기체 방출 거동이 서로 다른 것으로 나타났다.

3.1 79-442 및 79-506 핵연료봉

79-442 및 79-506 핵연료봉은 ThO_2 의 함량이 각각 93.4%와 82.9%이며 비슷한 수준의 출력 이력으로 실험이 수행되었다. 그림 5에는 두 핵연료봉의 출력이력이 나타나 있다. 79-506 핵연료봉이 약간 높은 출력으로 연소된 것을 알 수 있다. 그림 6에는 79-442 핵연료봉의 핵연료 중심온도 예측치와 함께 동일한 조건에서 100% UO_2 일 경우와 100% ThO_2 일 경우의 온도 예측치가 나타나 있으며 79-442 핵연료봉의 중심 온도 예측치는 두 경우의 중간 정도임을 알 수 있다.

두 핵연료봉의 실험 결과 79-442과 79-506 핵연료봉은 각각 0.5%, 2.0%의 핵분열 기체가 방출된 것으로 밝혀졌는데 INFRA를 통한 결과는 표 2에 정리된 바와 같이 각각 0.27%와 0.12%로 측정치에 보다 낮게 예측하고 있다. 특히 79-506 핵연료는 79-442의 핵연료와 비교하여 핵연료 온도도 높지 않고 낮은 연소도에서 큰 방출량을 나타내고 있는데 이는 그림 7에서 UO_2 핵연료의 연소도 증가에 따른 핵분열 기체 방출량 증가 결과에서 알 수 있듯이 낮은 연소도 구간에서의 측정치의 오차가 크기 때문이다[7]. INFRA의 예측에서는 79-506 핵연료봉의 방출량이 더 낮게 예측되었다. 상대적으로 연소도가 높은 79-442 핵연료에서는 측정치와 INFRA 예측치의 차이가 줄어드는 것을 알 수 있다.

3.2 79-349, 79-375 및 79-405 핵연료봉

그림 8에는 3개의 핵연료봉에 대한 출력 이력이 나타나 있다. 79-442 및 79-506 핵연료봉에 비해 연소도는 낮지만 높은 출력으로 연소되었음을 알 수 있다. 79-405 핵연료는 낮은 연소도에도 불구하고 핵분열 기체 방출량 측정에서 15.0%의 방출량을 나타내었지만 INFRA에 의한 계산에 의해서는 0.071% 만이 방출된 것으로 나타났으며 79-375 핵연료도 실측치인 8.4% 보다 낮은 0.062%가 방출된 것으로 나타났다. 이는 그림 9에서 나타나듯이 다른 실험봉들과 달리, 전체 주기에 걸쳐 1800 °C 이상의 고온에서 운전된 두 핵연료봉에서 급격한 결정립 성장으로 인한 핵분열 기체의 비정상적인 증가 때문이다.

79-405와 79-375 핵연료봉에 대한 조사후시험 결과에서도 전체 핵연료의 약 16.6%와 10.3% 해당하는 부분에서 초기 결정립 크기의 50%이상 성장이 발생한 것으로 나타났으며 이 영역에서는 생성된 핵분열 기체의 90% 이상이 방출된 것으로 나타났다[8]. 79-349 핵연료봉은 실험기간 중에서 고온으로 운전된 시간이 단기간이기 때문에 결정립의 성장이 크게 발생하지 않았으며 1.9%의 핵분열 기체가 방출된 것으로 나타났다. INFRA의 예측 결과는 0.05% 만이 방출된 것으로 나타났으며 실제 측정치와의 오차는 79-442, 79-506 핵연료봉과 마찬가지로 낮은 연소도/낮은 방출량에 의해 발생한 것으로 판단된다.

3.3 결정립 성장과 핵분열 기체 방출

주기말에서 결정립 경계면에서 핵분열 기체 농도와 포화농도의 반경 방향 분포를 나타낸 그림 10의 결과와 같이 INFRA의 방출량 예측은 포화농도를 넘지 못했기 때문에 low FGR 모델로 계산된 낮은 방출량을 예측하고 있다. 그러나 그림 9의 결과와 같이 79-405, 79-375 핵연료봉은 거의 전 주기에 걸쳐 1800°C 이상의 온도를 유지하고 있으며 3개의 핵연료는 상

대적으로 낮은 온도를 유지하고 있다. 이러한 경향은 그림 11의 각 핵연료의 주기중 최고 중심 온도에서의 반경 방향 온도 분포에서도 알 수 있다. 따라서 79-405, 79-375 핵연료는 방출량의 대부분이 결정립 성장에 의해 방출된 것을 알 수 있으며 79-349 핵연료는 고온 운전 기간이 짧았기 때문에 이러한 현상이 크게 발생하지 않은 것을 알 수 있다. 따라서 대부분의 핵분열기체 방출은 고온 조사시험으로 인해 결정립 성장으로 인해 일어났으며, 결정립 성장에 의한 핵분열기체 방출은 기존의 확산에 의한 핵분열기체방출모델로는 예측할 수 없었다.

4. 결론 및 토의

ThO₂-UO₂ 핵연료의 노내 거동을 분석하기 위해 UO₂ 핵연료성능분석코드인 INFRA로부터 소결체 열전도도, 핵연료 반경방향 출력/연소도 변화, 소결체 열팽창 모델을 변경하여 INFRA-Th 버전을 개발하였다. INFRA-Th을 이용하여 LWBR 프로그램에서 생산된 5종의 ThO₂-UO₂ 핵연료 핵분열기체방출 시험 자료를 평가하였다. 평가 결과, 일부 실험 자료는 낮은 연소도까지 실험이 수행되어 핵분열 기체 방출량이 매우 적었다. 핵분열기체 방출량이 큰 경우에는 핵연료의 온도가 매우 높아서 결정립 성장이 발생하였으며, 결정립 성장이 발생한 영역에서는 대부분의 핵분열기체가 방출되었기 때문에, 기존의 확산에 기초한 핵분열기체방출모델을 적용에는 한계가 있었다. 따라서 ThO₂-UO₂ 핵연료의 핵분열 기체 방출거동 평가를 위해서는 높은 연소도 및 실제 경수로 연소 조건인 결정립 성장이 일어나지 않는 온도에서 연소된 조사 시험 자료가 필요한 것으로 나타났다.

5. 참고 문헌

- [1] C.B. Lee et al., "Evaluation of (Th,U)O₂ Fuel Usage in PWR", GLOBAL 2001, Paris, France (2001)
- [2] 이찬복 외, "UO₂ 핵연료봉 성능 분석코드 INFRA 개발", 2001 춘계학술대회 논문집, 227, 2001
- [3] Y. Yuan, P. Monnier, C.S. Rim and M.S. Kazimi, "Fission Gas Release Modeling for Thoria-Urania Fuels: A Preliminary Investigation", MIT-NFC-TR-022, 2000
- [4] J. Belle and R.M. Berman, Thorium Dioxide: Properties and Nuclear Applications, DOE/NE-0060, August 1984.
- [5] D.D. Lanning, C.E. Beyer, C.L. Painter, "FRAPCON-3: Modifications to Fuel Rod Material Properties and Performance Models for High-Burnup Application", NUREG/CR-6534 Vol. 1, PNNL-11513.
- [6] 이찬복 외, "경수로용 (Th,U)O₂ 핵연료의 연소 특성 분석", 2000 춘계학술발표대회 논문집, 2000.
- [7] B. Manzel, C.T. Walker, "High Burnup Fuel Microstructure and its Effect on Fuel Rod Performance", Proceedings of the 2000 International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Park City, Utah, April 2000.
- [8] I. Goldberg, L.A. Waldman, J.F. Giovengo and W.R. Campbell, "Fission Gas Release and Grain Growth in ThO₂-UO₂ Fuel Irradiated at High Temperature", WAPD-TM-1350, Addendum, July 1979

표 1. LWBR 핵연료봉 조사 시험 요약

Rod No.	79-442	79-506	79-349	79-375	79-405
wt % of ThO ₂	93.4	82.9	80	70	80
Fuel density (% TD)	96	95.3	95	92	94
Pellet diameter (in)	0.208	0.462	0.652	0.645	0.651
Clad. outer diameter (in)	0.366	0.638	0.717	0.717	0.717
Diametral Gap (mils)	7.1	6.9	4	12	6
Peak LHGR (kW/ft)	10.35	14.48	22.45	19.34	22.17
Peak Burnup(MWd/mtHM)	45300	21100	8070	9990	11300
Measured FGR (%)	0.5	2.0	1.9	8.4	15.0

표 2. 핵분열기체방출 분석

	79-442	79-506	79-349	79-375	79-405
Mesured FGR(%)	0.5	2.0	1.9	8.4	15.0
Predicted FGR(%)	0.27	0.12	0.071	0.062	0.05
Grain growth (% of total fuel volume)	-	-	3.3	10.3	16.6

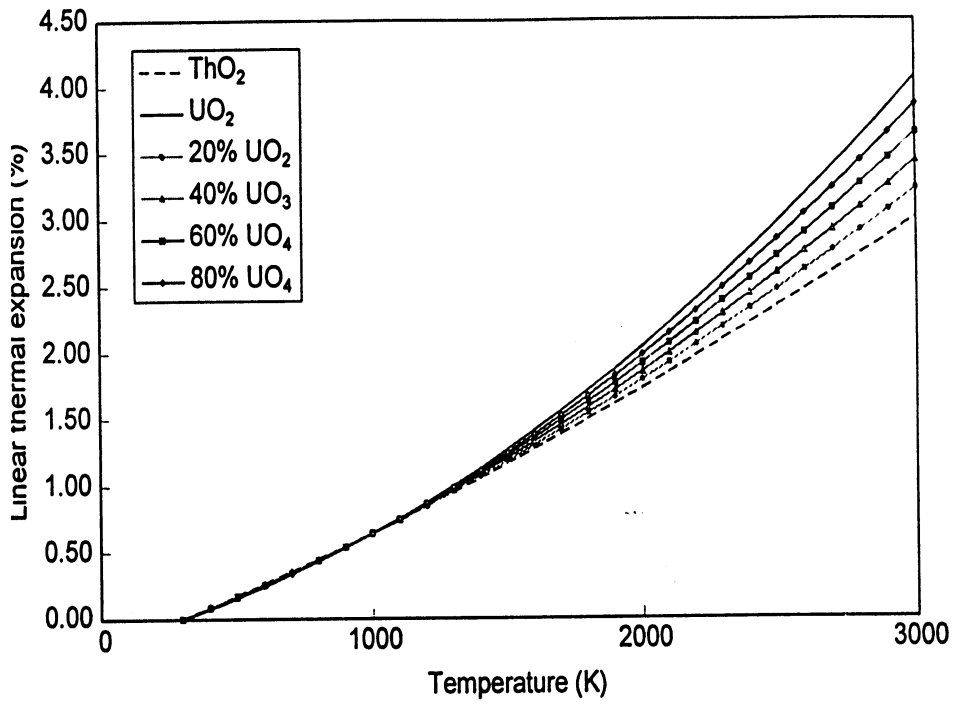


그림 1. 온도 및 UO₂ 함량에 따른 ThO₂-UO₂ 핵연료의 열팽창

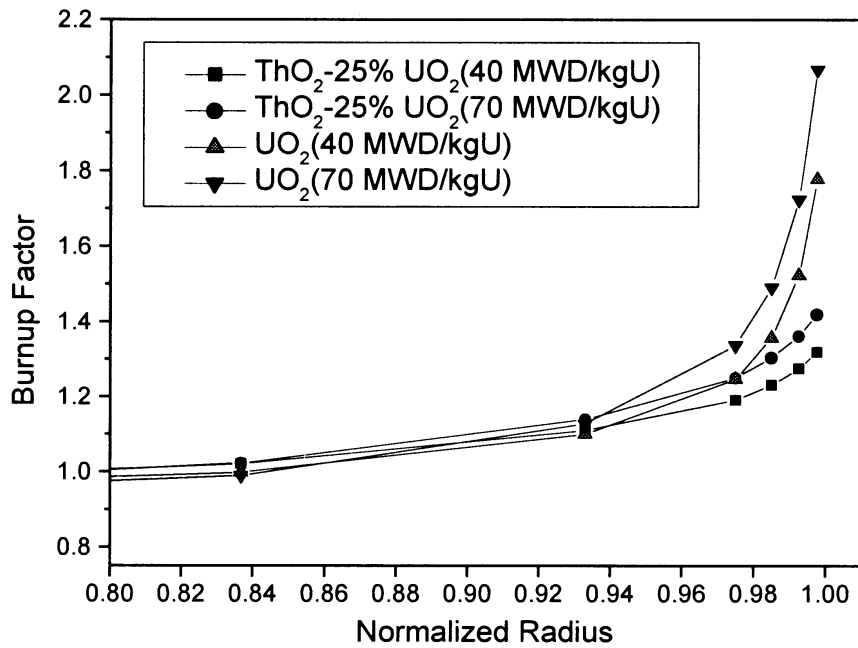


그림 2. 연소도에 따른 UO₂ 및 ThO₂-UO₂ 핵연료의 반경방향 연소도 분포

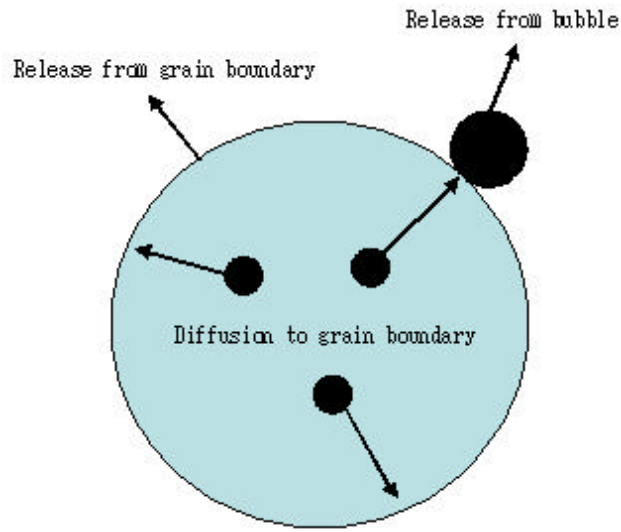


그림 3. INFRA 핵분열 기체 방출 모델

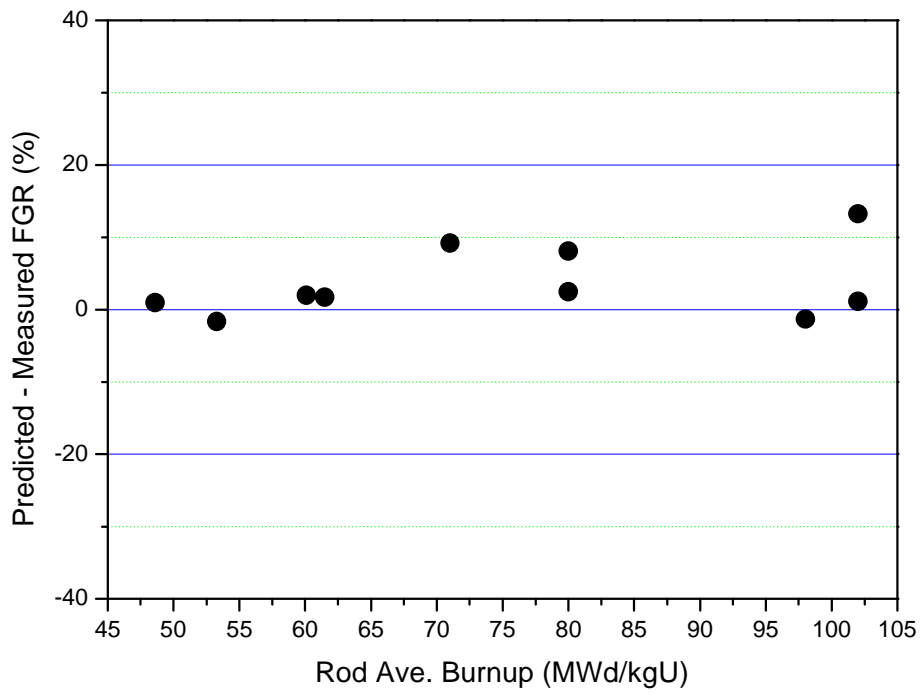


그림 4. INFRA 핵분열 기체 방출 모델 예측 결과

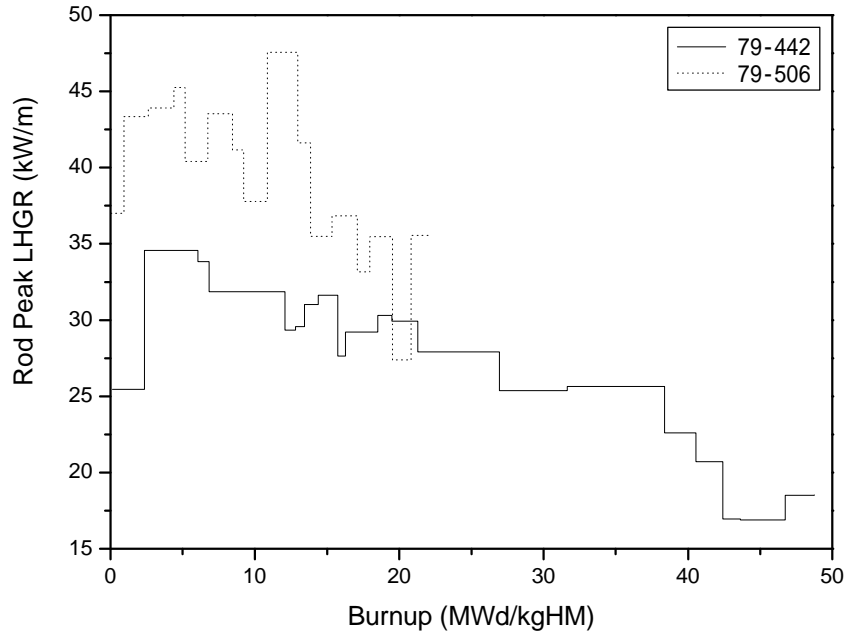


그림 5. 79-442 및 79-506 핵연료봉 출력 이력

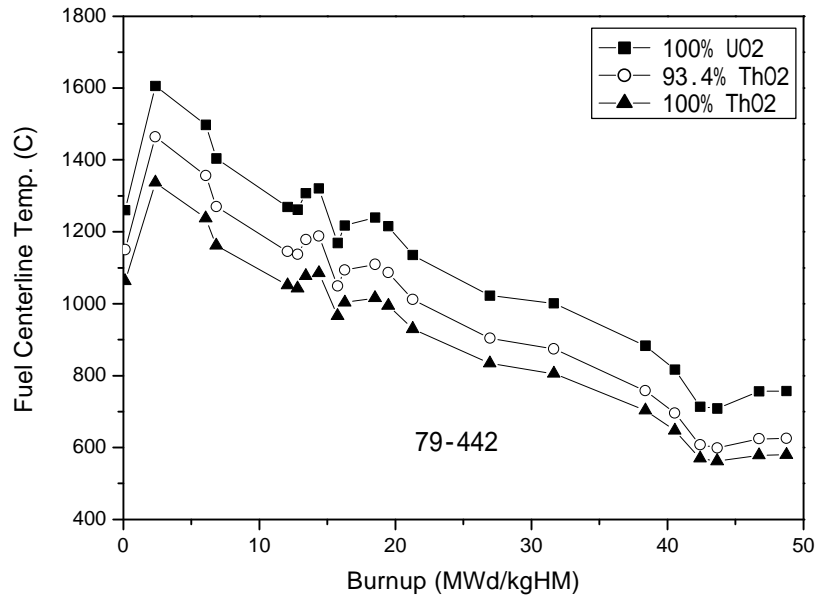


그림 6. 토륨 함량 변화에 따른 핵연료 중심 온도 변화

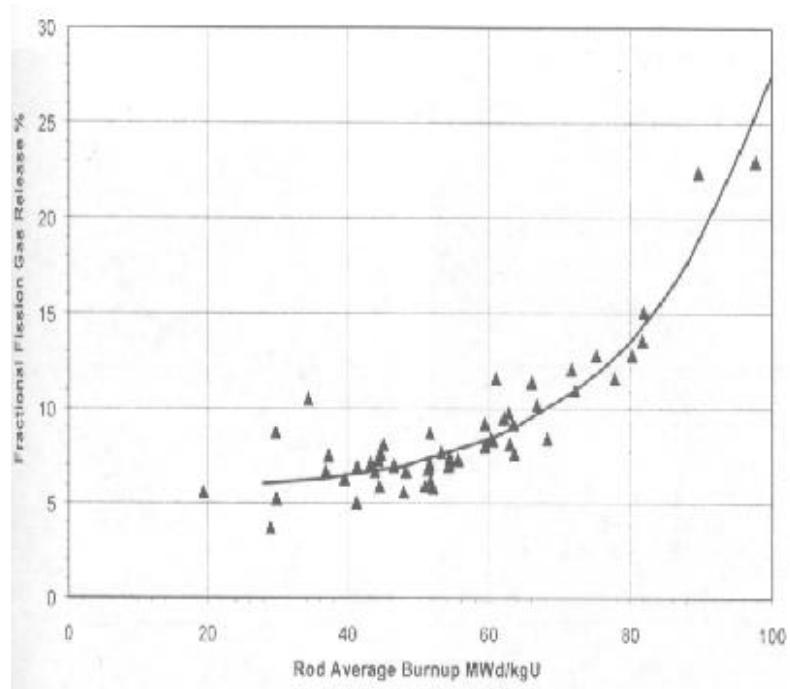


그림 7. 연소도에 따른 핵분열 기체 방출량 증가

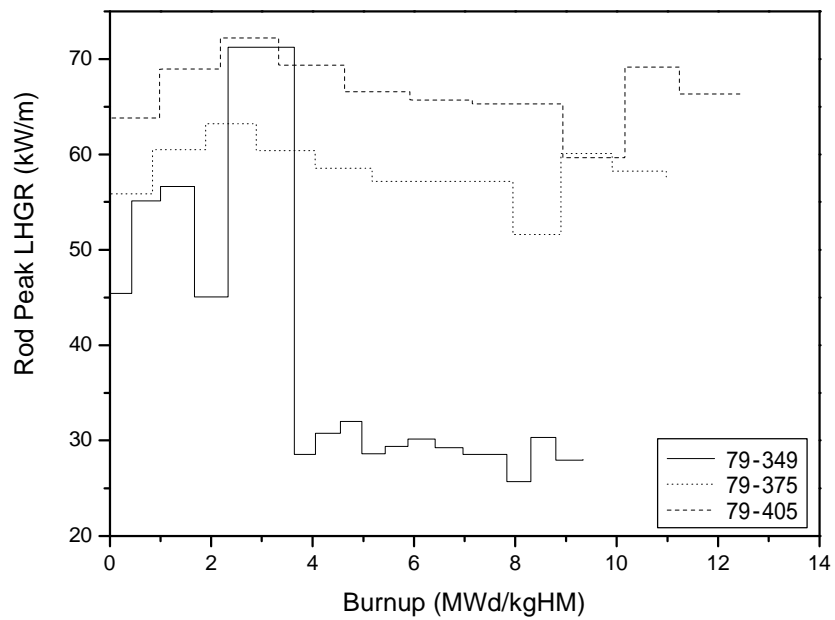


그림 8. 79-349, 79-376, 79-405 핵연료봉 출력 이력

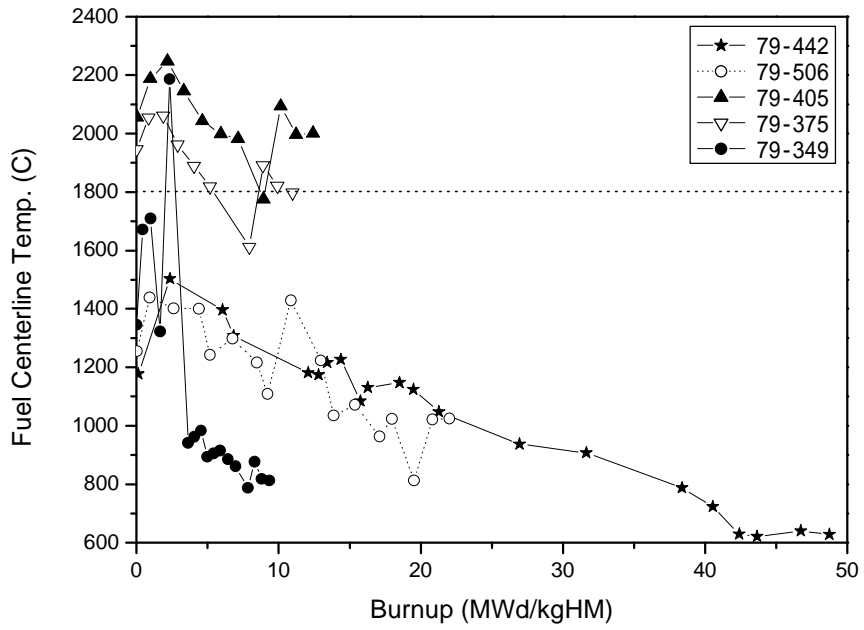


그림 9. 핵연료 중심 온도의 변화

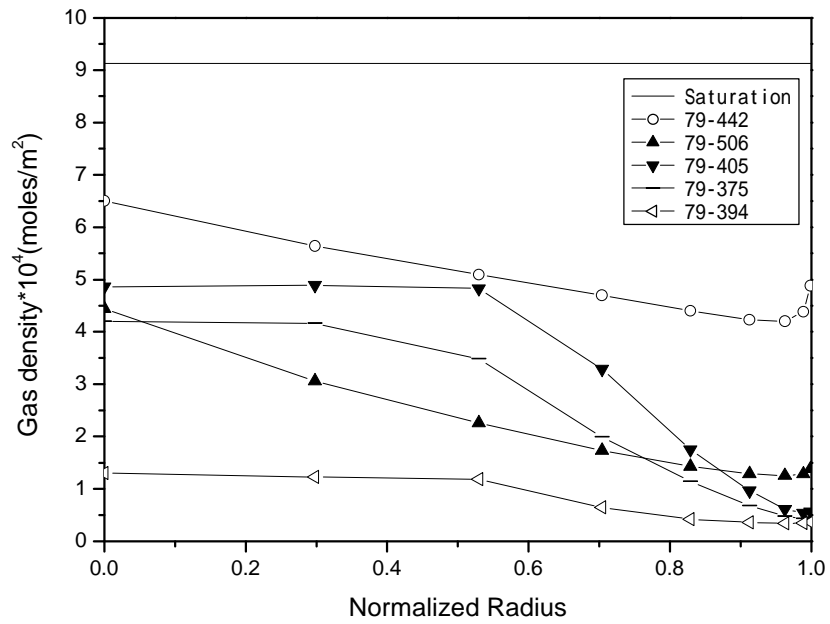


그림 10. 수명말에서 핵연료 결정립 경계에서의 핵분열 기체농도

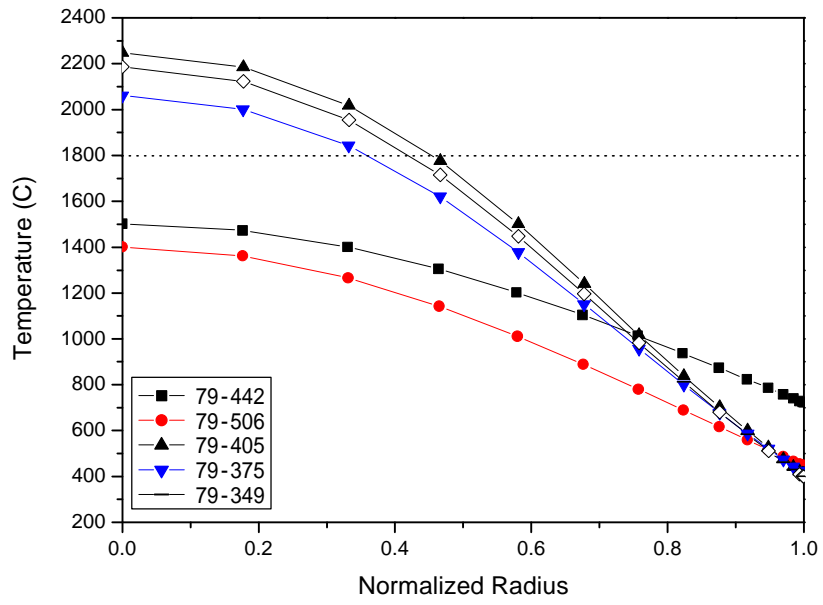


그림 11. 최고 출력에서의 핵연료 반경방향 온도 분포