2004 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

연소도 변화가 이산화우라늄의 열전도도에 미치는 영향 연구

The effect of the thermal conductivity in Uranium dioxide as the change of burn-up

김용수, 임병주, 이현선
한양대학교
서울특별시 성동구 행당동 17번지

요 약

이 연구에서는 핵연료 성능에 영향을 미치는 요소인 열전도도가 연소도에 따라 어떻게 변화하는 것을 확인하고 핵연료의 열전도도에 대한 이해를 위해 UO_2 열전도도에 관한 최근 모델들을 조사하고 노내 상황을 모사하는 대표적인 코드인 FRAPCON-3에 각 모델을 이식하고 in-pile자료를 입력하여 비교/평가하였다. UO_2 열전도도는 연소도가 증가하면서 핵연료의 미세조직의 변화와 생성물 자체의 재배치(redistribution)와 이동(migration) 등이 감소하는 경향을 보였다. 그리고 연소도가 배제된 온도만의 열전도도의 경우에도 각 연구자의 모델마다 차이가 존재하는데 이는 연소도가 증가할수록 그 차이는 커짐을 알 수 있다.

Abstract

In this study, recent models of UO_2 thermal conductivity which is the factor of influence on the high burn-up nuclear fuel ability are collected and analyzed in order to see the change of UO_2 thermal conductivity in burn-up. then they are analyzed for the benchmarking of the models with the in-pile data sets also used in FRAPCON-3. as burn-up increase, UO_2 thermal conductivity decrease due to the change of UO_2 microstructure and redistribution and migration of fission product. UO_2 thermal conductivity have the difference between the suggested thermal conductivities model. as the burn-up increase, the difference of UO_2 thermal conductivity increases

1. 서론

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

본 연구에서는 고연소 장주기용 핵연료 성능에 영향을 미치는 요소 중 하나인 핵연료 중심온도에 민감한 열적 물성치인 UO_2 열전도도에 관한 최근 모델들을 조사하고 노내 상황을 예측하는 대표적인 코드인 FRAPCON-3를 사용하여 각 모델을 검증 및 비교/평가하였다.

2. UO_2 열전도도 모델

Fink가 제안하는 열전도 모델은 최근까지 연구되어온 UO_2의 열전도과정에 대한 이해와 실험 자료들에 근거하고 있다. UO_2에서의 열전도 과정은 거의 격자 운동과 전자에 의한 열 수송(transport)에 기인하고 Ronchi에 의해서 제안된 모델을 바탕으로 새로운 phonon lattice term 을 도입하여 열전도도를 제안하였다.

Hyland는 Killeen’s model (1980)을 바탕으로 phonon lattice term과 radiation, 전자에 의한 영향을 고려한 열전도도 모델을 제시하였고 이 중 radiation에 의한 영향은 무시할 수 있을만큼 작다고 제안하였다. Harding은 phonon term과 전자 term에 의한 열전도도모델을 구성하였다. Hirai는 고온에서 복사에 의한 열전도도의 현저한 증가를 나타내는 열전도도를 제안하였다. Ronchi는 최근 laser flash technique을 이용하여 UO_2의 thermal diffusivity와 열용량을 구하고, 이러한 실험 자료들에 근거하여 phonon과 전자에 의한 열전도도의 새로운 모델을 제시하였다. UO_2의 열전도도를 평가함에 있어서 phonon에 의한 영향은 $(A+BT)^{-1}$의 관계를 따르도록 하였으며 radiation에 의한 영향은 거의 무시할 수 있을 정도로 작고 전자에 의한 영향이 지배적이라 생각하고 Wiedenmann-Franz의 법칙을 이용하여 UO_2의 열전도도를 나타내었다.

Halden은 연소도가 제로이고 온도만을 고려한 MATPRO model을 기본식으로 연

소도를 고려한 phonon term을 고려한 식으로 일반화시킨 열전도도 모델을 제안하였다. 이 모델은 UO_2 열전도도를 phonon interaction과 고온에서의 전자의 역할로 설정하고 phonon의 영향을 서술하는 1/(A+BT)의 식에서 ‘A’를 연소도에 대한 함수로 제안하였다. Philipponneau는 $(U,Pu)O_{2-x}$ 혼합된 핵연료의 열전도도를 연구하였다. Lucuta는 Harding의 모델을 기초로 하여 SIMFUEL과 조사측정의 결과를 반영하여 새로운 모델을 제시하였다. 이 모델은 핵분열생성물, 미세기공(bubble), 핵연료의 stochiometry, 방사선조사에 의한 영향을 고려하여 이를 반영한 모델이다. Carbajo는 stochiometry를 고려하지 않은 Lucuta 모델을 기초로 하여 열전도도 모델을 제안하였다. 그러나 Lucuta 모델이 Harding 모델을 기초로 하여 열전도도 모델을 제안한데 반하여 Carbajo는 Fink 모델을 기초로 하여 Lucuta에 적용하였다.

표 1은 각 저자별로 제안한 열전도도 모델을 나타낸 표이다.

3. UO_2 열전도도 모델의 비교검증평가

그림 3에서 그림 5는 연소도별(0, 30000, 50000 MWd/MtU)에 해당하는 열전도도 모델을 도식하였고 그림 6은 이를 종합적으로 비교할 수 있도록 나타내었다. 그림을 보면 열전도도는 연소도가 증가할수록 감소하는 추세를 보이고 있다. 그리고 온도가 상승하면서 1800 °K에서 2000 °K에 이르러서 증가하는 것을 확인할 수 있다. 그림 7과 그림 8은 대표적인 열전도도 모델들을 FRAPCON-3 코드에 이식하여 나온 결과를 비교하였다. 연소도가 배제된 온도만의 열전도도의 경우에도 각 연구자의 모델마다 차이가 존재하며 연소도가 증가할수록 그 차이는 커져 50,000 MWd/MtU정도의 고연소도에서는 30% ~ 40%에 이르고 있다. 이러한 온도와 연소도에 따른 열전도도의 차이는 핵연료봉의 열적성능에 결정적인 차이를 유발할 수 있는데 그림 7과 그림 8에서 보듯이 선출력이 높게 운전된 BR-3 rod 111i5의 경우는 연소도가 40,000 MWd/MtU에 이르면 UO_2 중심온도의 예측값의 차이가 400 ℃에 이르고 있다. 이러한 중심온도의 큰 차이는 핵분열 생성기체 방출율과 봉내압 예측값의 차이를 유발하고 이는 피복관 creep, 부식성장 등에도 결정적으로 영향을 미치게 된다. 실제 현재까지 가장 정교한 in-pile 실험으로 평가받고 있는 Halden 모델의 경우 이제까지 발표된 다른 모델들보다 낮은 열전도도 값을 나타내고 있으며 특히 연소도가 증가하면 그 차이는 점점 증가하게 된다. 따라서 UO_2 열전도도의 경우 좀 더 꾸준하고 다양한 in-pile 실험결과와의 비교평가 검증이 필요한 것으로 판단된다.

4. 결론

고연소 핵연료의 성능 및 거동의 영향에 대한 최근 실험에 의하면 핵분열 생성물

의 물리학적 거동에 따른 핵연료의 미세조직의 변화와 생성물 자체의 재배치(redistribution)와 이동(migration) 등이 핵연료 열전도도에 큰 영향을 미치는 것으로 밝혀지고 있다. 최근 1990년에 들어서며 측정장치의 정교함으로 실험결과의 분산이 줄어들고 있다. 또한 핵연료 열전도도의 경우 최근 열전도도 모델을 수집/분석하여 FRAPCON-3 코드에 이식하여 비교/검증하였다. 이 과정에서 가장 정교한 in-pile 실험으로 평가받고 있는 Halden 모델의 경우 이제까지 발표된 다른 모델들보다 낮은 열전도도 값을 나타내고 있으며 특히 연소도가 증가하면 그 차이는 점점 더 증가하였다. 따라서 UO_2 열전도도의경우 좀 더 정밀하고 다양한 in-pile 실험결과와의 비교평가 검증이 필요할 것이다.

참고문헌

[1] J.K. Fink, M.G. Chasanov, L Leibowitz, "Thermophysical properties of UO_2", 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, "A pragmatic approach to modeling thermal conductivity of irradiated UO_2 fuel" 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] W. Wiesenack, "Assessment of UO_2 conductivity degradation based on in-pile temperature data"

[11] C. Ronchi, "On the thermal conductivity and diffusivity of solid and liquid uranium dioxide" J. Phys.:Condens. Matter 6 (1994) L561-L567

[12] Juan J. Carbajo, Gradyon L. Yoder, Sergey G. Popov, Victor K. Ivanov "A review of the thermophysical properties of MOX and UO_2 fuels" J. Nucl, Mater

299 (2001) 181-198
[13] Y. Philipponneau "Thermal conductivity of (U, Pu)O_{2-x} mixed oxide fuel" J. Nucl, Mater 188 (1992) 194-197
[14] Mutsumi Hirai, Shinji Ishimoto "Thermal diffusivities and thermal conductivities of UO_2-Gd_2O_3

Model proposer	Model
Fink (2000)	$K=\frac{100}{7.5408+17.692(T/1000)+3.6142(T/1000)^2}+\frac{6400}{(T/1000)^{5/2}}\exp\left\{-\frac{16.35}{(T/1000)}\right\}$
Hyland (1983)	$K=\frac{100}{3.75+21.65(T/1000)}+\frac{225}{(T/1000)}\exp\left(-\frac{12.41}{T/1000}\right)$
Harding (1989)	$K=\frac{100}{3.75+21.65(T/1000)}+\frac{4715}{(T/1000)^2}\exp\left(-\frac{16.361}{T/1000}\right)$
Hirai (1991)	$K(T)=\frac{1}{0.0235+0.255(T/1000)}+3.57\times10^{-3}(T/1000)^3$ $K=K_{95}\cdot(1-\beta p)/(1-0.05\cdot\beta)$ p: porosity, T: temperature (K), β: $2.58-0.58\times10^{-3}$T
MATPRO (1993)	$K=\left\{\frac{C_v}{(0.339+0.06867T)(1+3e_{th})}\right\}+5.2997\times10^{-3}Te^{-\frac{13358}{T}}\left[1+0.169\left\{\left(\frac{13358}{T}\right)+2\right\}^2\right]$
Ronchi (1999)	$K=\frac{100}{6.548+23.533(T/1000)}+\frac{6400}{(T/1000)^{5/2}}\exp\left(-\frac{16.35}{T/1000}\right)$
Halden (1999)	$K=\frac{1}{0.1148+0.0035B+(2.475\times10^{-4}-8.24175\times10^{-7}B)T}+0.0132\exp(0.00188T)$
Philipponneau (1992)	$K(T)=\frac{1}{0.04193+0.44B+0.2885(T/1000)}+7.638\times10^{-4}(T/1000)^3$
Lucuta (1996)	$K=f_{1d}\,f_{1p}\,f_{2p}\,f_{3x}\,f_{4r}K_0$ $f_{1d}=\left(\frac{1.09}{\beta^{3.265}}+\frac{0.0643}{\sqrt{\beta}}\sqrt{T}\right)\arctan\left\{\frac{1}{1.09/\beta^{3.265}+\left(0.0643/\sqrt{\beta}\right)\sqrt{T}}\right\}$ $f_{1p}=1+\left(\frac{0.019\beta}{3-0.019\beta}\right)\frac{1}{1+\exp\{-(T-1200)/100\}}$ $f_{2p}=\frac{1-p}{1+(\sigma-1)p}$ $f_{3x}=1$ $f_{4r}=1-\frac{0.2}{1+\exp\{(T-900)/80\}}$
Carbajo (2001)	$K=f_{1d}\,f_{1p}\,f_{2p}\,f_{3x}\,f_{4r}K_0$ $f_{1d}=\left(\frac{1.09}{\beta^{3.265}}+\frac{0.0643}{\sqrt{\beta}}\sqrt{T}\right)\arctan\left\{\frac{1}{1.09/\beta^{3.265}+\left(0.0643/\sqrt{\beta}\right)\sqrt{T}}\right\}$ $f_{1p}=1+\left(\frac{0.019\beta}{3-0.019\beta}\right)\frac{1}{1+\exp\{-(T-1200)/100\}}$ $f_{2p}=\frac{1-p}{1+(\sigma-1)p}$ $f_{2p}=\frac{1-p}{1+(\sigma-1)p}$ $f_{4r}=1-\frac{0.2}{1+\exp\{(T-900)/80\}}$

표 1. 저자별로 제안한 열전도도 모델

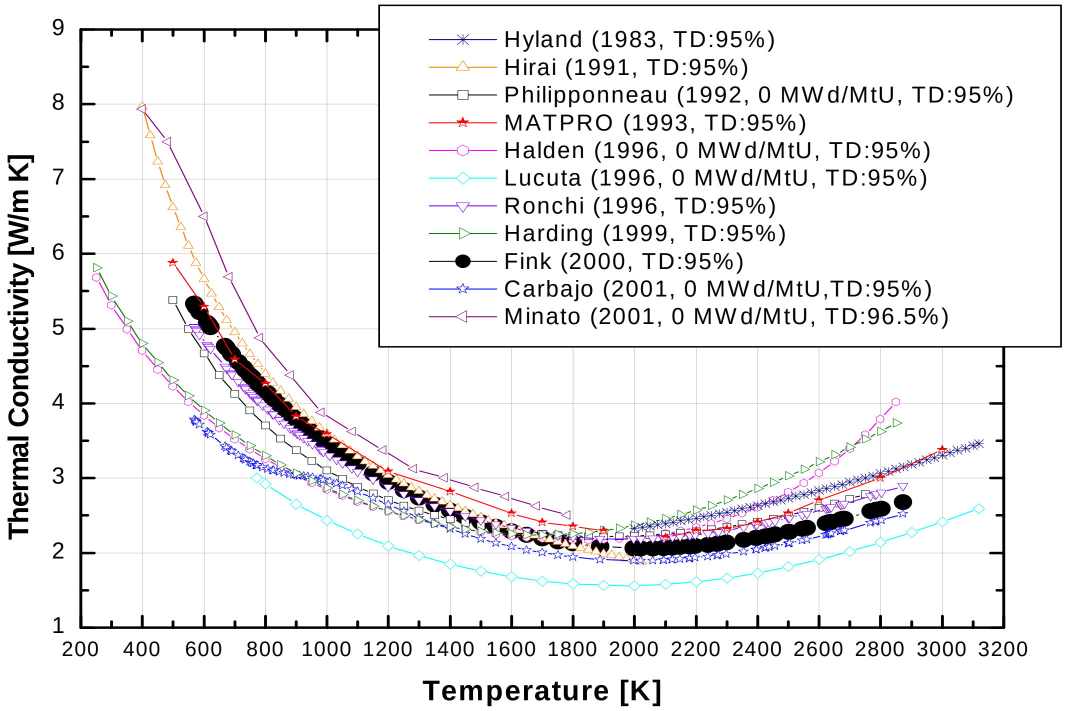

그림 1. UO_2 온도에 따른 열전도도 비교

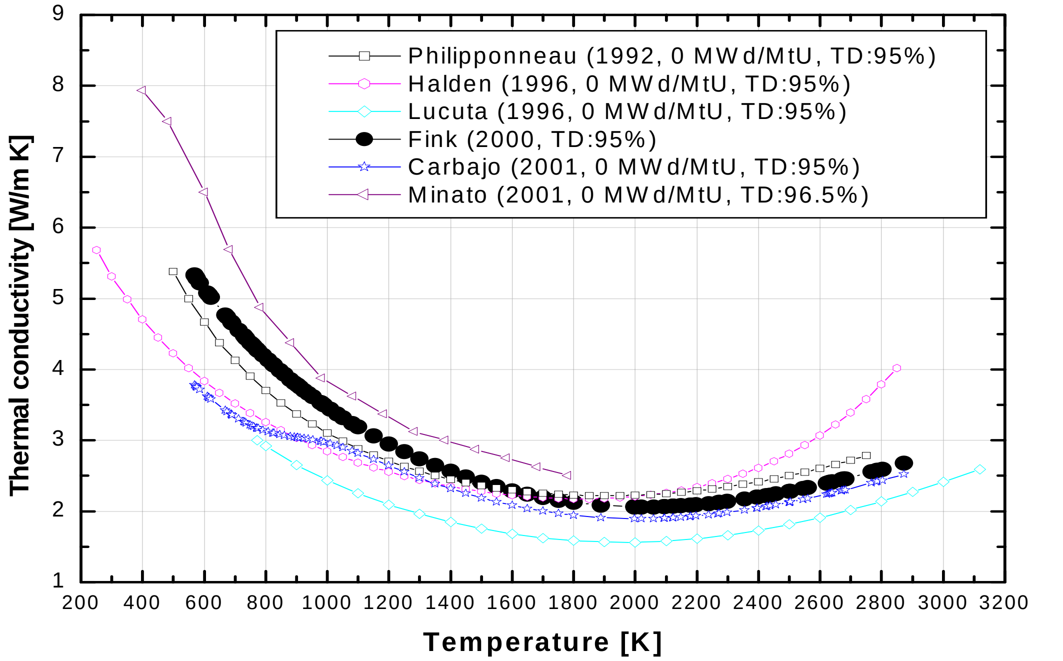

그림 2. UO_2 온도에 따른 열전도도 비교

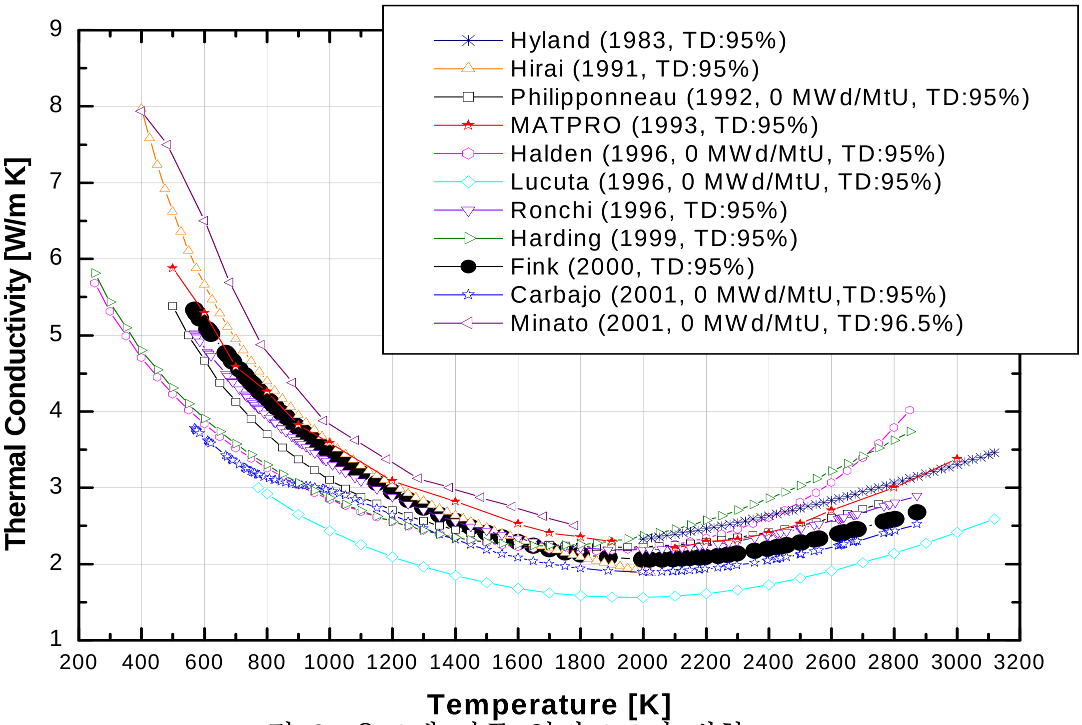

그림 3. 온도에 따른 열전도도의 변화

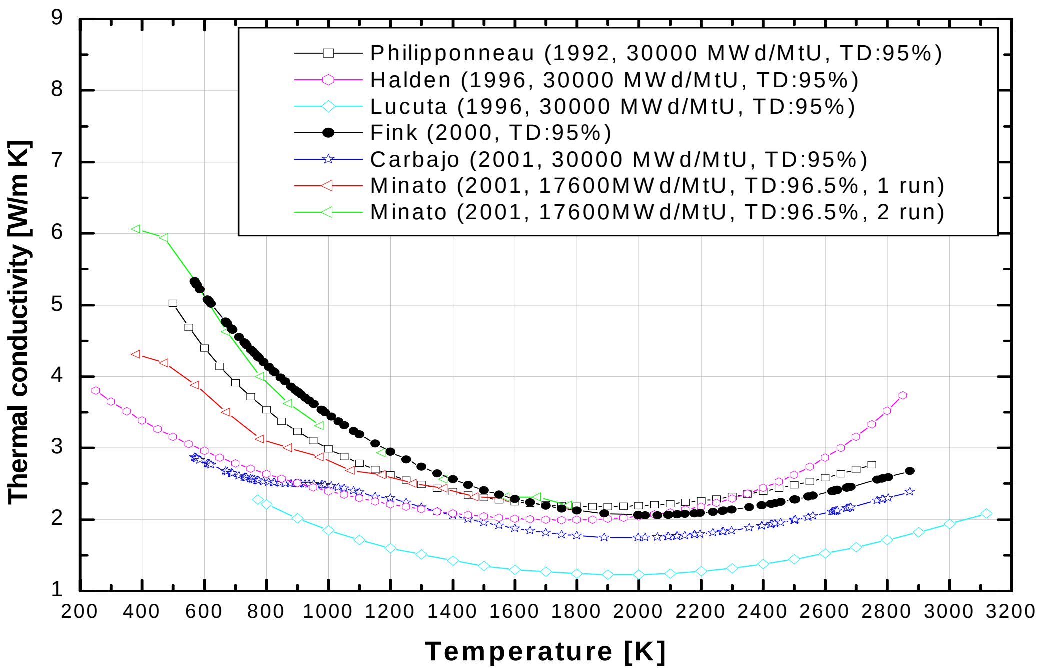

그림 4. 30000 MWd/MtU에서 열전도도의 변화

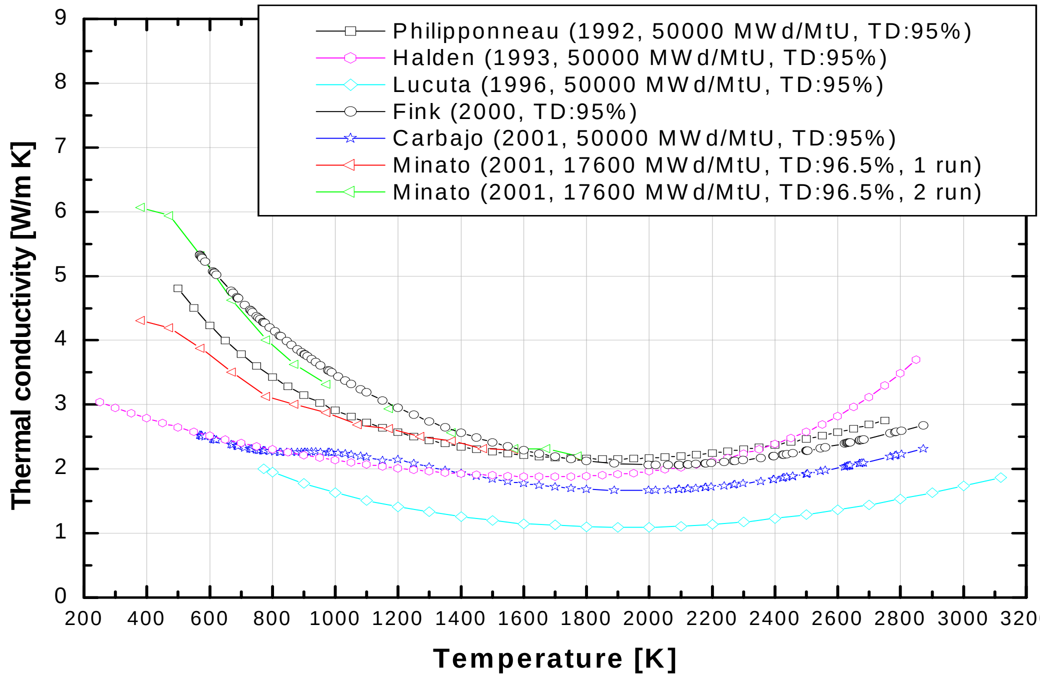

그림 5. 50000 MWd/MtU에서 열전도도의 변화

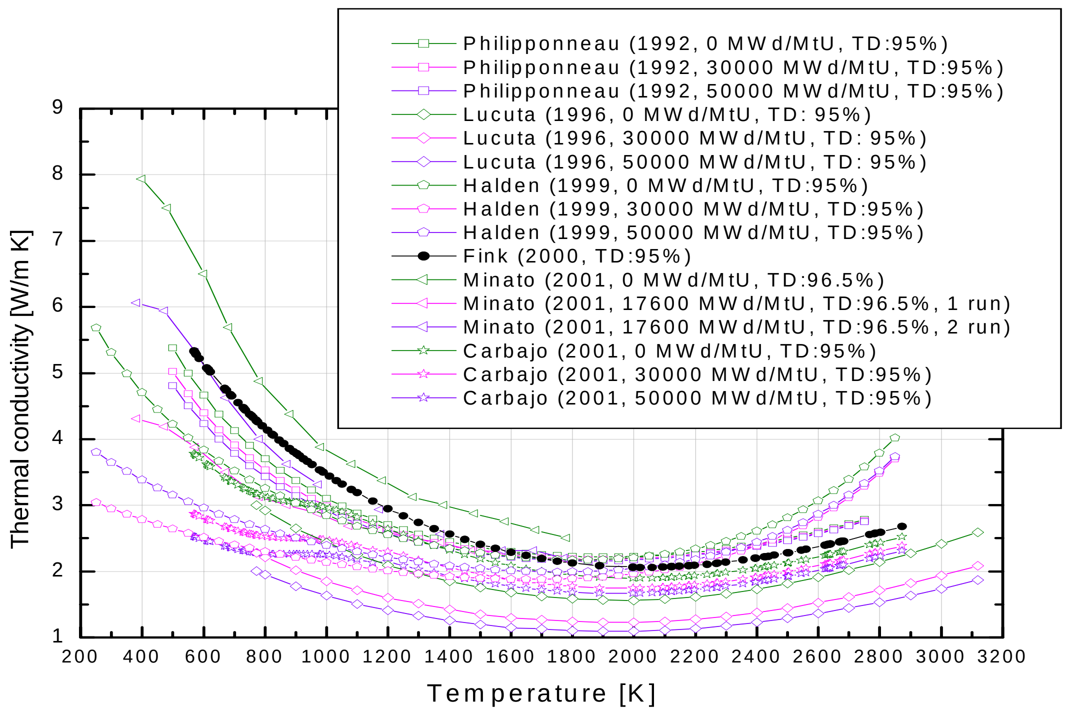

그림 6. 연소도에 따른 열전도도 비교

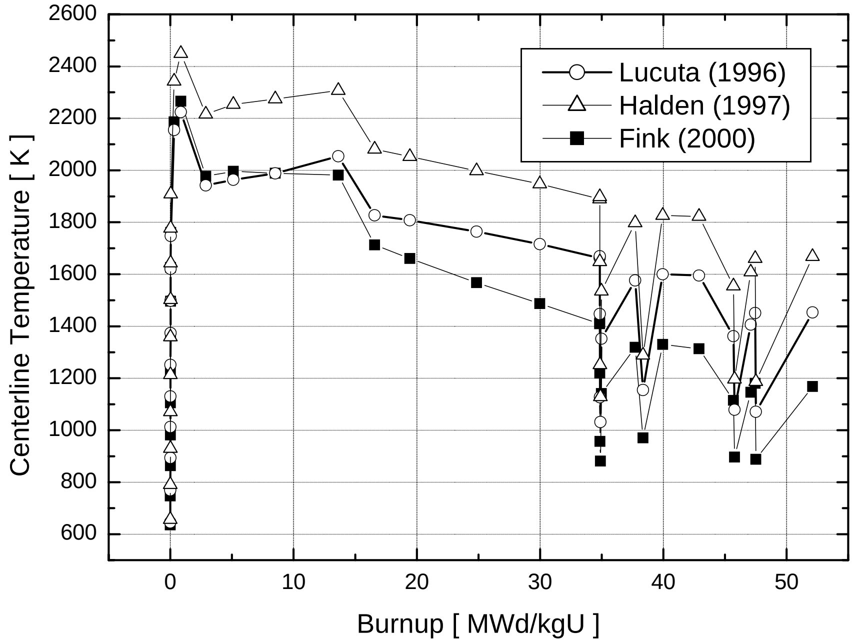

그림 7. BR-3 rod 111i5

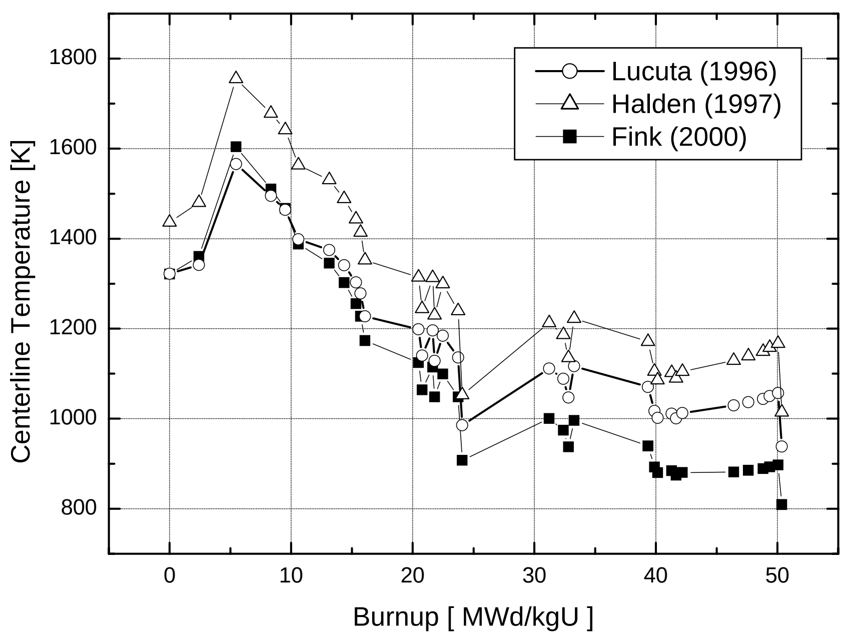

그림 8. Oconee rod 15309