

금속 핵연료의 핵분열 생성물에 대한 누설률 계수 및
사고 시 핵종 별 방출 분률의 예비 평가

Preliminary Evaluation of Escape Rate and Fraction
of Fission Products Released in Zr-U Metallic Fuel

구양현, 천진식, 오제용, 이병호, 임정식, 손동성

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

초 록

일체형 원자로의 방사선원 항과 설계기준 방사선원 항 분석에 각각 필요한 금속 핵연료의 핵분열 생성물에 대한 누설률 계수와 사고 시 핵종 별 방출 분률을 예비적으로 평가하였다.

ABSTRACT

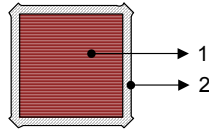
The escape rate and the fraction of fission products released to the reactor coolant, which are required for the determination of radioactive source terms for normal operating conditions and for the analysis of radiological consequences for accident conditions, respectively, were preliminary evaluated for Zr-U metallic fuel.

1. 서론

일체형 원자로의 예상(혹은 운전기준) 방사선원 항과 설계기준 방사선원 항을 계산하려면 이 원자로에 장전될 금속 핵연료의 핵분열 생성물에 대한 “누설률 계수”와 “사고 시 핵종 별 방출 분률”이 요구된다. 본 논문의 목적은 금속 핵연료에 대한 “누설률 계수”와 “사고 시 핵종 별 방출 분률”을 예비적으로 평가하는 것이다.

2. 금속 핵연료

일체형 원자로에 사용될 금속 핵연료봉의 단면은, 그림 1에 제시된 바와 같이, 정방형으로서 Self-spacing 및 냉각 효율을 증가시키기 위해 네 모서리에 핀(Fin)이 존재한다. 또한 압출 공정으로 제조된 금속 핵연료에서는 핵연료 심재와 피복재가 재료적으로 결합하므로, PWR의 UO_2 핵연료와는 달리, 피복재와 심재 사이에 갭이 존재하지 않는다. 단면이 정방형인 금속 핵연료의 심재는 U과 Zr의 이종 합금이며 피복재 재질은 내부식성이 아주 강한 Zr-1%Nb이다. 핵연료봉 중의 심재가 장전된 유효 길이는 800 mm이며, 심재 한 번의 길이 및 피복재 두께는 각각 4.1 mm와 0.5 mm이다.



1	Fuel meat	U-Zr alloy
2	Clad	Zr-1%Nb

그림 1. 금속 핵연료 개략도.

3. 핵분열 생성물의 누설률 계수 및 사고 시 핵종 별 방출 분률의 정의

3.1 누설률 계수

정상 운전 시 발전소에서 환경으로 방출되는 방사선의 연간 평균 방출량 및 선량 평가에 사용되는 예상 방사선원향을 분석하려면 핵분열 생성물의 누설률 계수가 필요하다 [1]. 이 누설률 계수는, 핵연료봉 피복재의 일부가 손상된 상황에서 원자로가 정상적으로 운전되고 있는 경우, 손상된 핵연료 부위에서 일차 냉각재로 방출되는 특정한 핵종의 핵분열 생성물 원자 수를 그 시점에서 손상 핵연료에 저장되어 있는 그 핵종의 총 원자 수로 나눈 값으로 정의된다. 그리고 이 값은 핵종의 물리적·화학적 성질에 따라 다르므로, 방사선원향 분석의 대상인 주요한 핵종들에 대한 각각의 값이 필요하다.

누설률 계수에 손상된 핵연료봉 내의 특정한 핵분열 생성물의 개수를 곱하면 하나의 손상된 핵연료에서 단위 시간 당 누설되는 특정한 핵분열 생성물의 개수가 계산되며, 다시 이 값에 핵연료 손상률과 원자로 내 총 핵연료봉 개수를 곱하면, 손상된 모든 핵연료에서 단위 시간 당 일차 냉각재로 누설되는 특정한 핵종의 총 개수가 계산된다. 여기에서 핵연료 손상률은 운전 중에 평균적으로 손상되는 핵연료봉 개수를 원자로에 장전되어 있는 전체 핵연료봉 중에서 차지하는 비율이다.

3.2 사고 시 핵종 별 방출 분률

3.2.1 PWR에 대한 갭 내의 핵종 별 존재 비율

설계기준 방사선원 향은 방사성 폐기물 계통 등의 설계 적합성을 평가하고 일부 사고를 해석하는 데 사용된다. UO_2 핵연료를 사용하는 PWR의 경우에는 설계기준 방사선원 향을 계산하기 위해 갭 내의 핵종 별 존재 비율을 사용한다 [1]. 이 값의 정의는 “DNB를 초과하여 핵연료 피복재가 손상되는 사고(피복재만 손상됨)가 발생하거나 핵연료 취급사고 발생 시 핵연료로부터 일차 냉각재로 방출되는 핵분열 생성물의 비율을 결정하기 위해 사고 시점에서 소결체와 피복재의 갭 사이에 존재한다고 가정하는 비율”이다. 하지만 UO_2 핵연료에 대한 갭 내의 핵종 별 존재 비율이란 용어 및 정의를 심재와 피복재 사이에 갭이 존재하지 않는 금속 핵연료(그림 2)에 적용할 수 없으므로 금속 핵연료에 대한 새로운 정의가 필요하다.

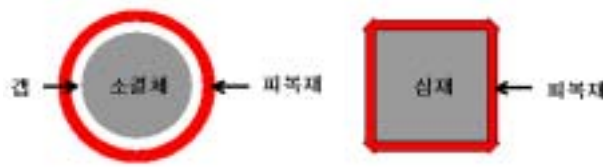


그림 2. PWR UO₂ 핵연료 및 금속 핵연료의 단면 개략도.

3.2.2 일체형 원자로에 대한 사고 시 핵종 별 방출 분률

금속 핵연료에는 갭이 존재하지 않으므로 사고 시 짧은 시간 내에 일차 냉각재로 방출되는 핵분열 생성물의 분률로 정의하는 것이 적절하다. 이에 따라 금속 핵연료에 대해서는 핵분열 생성물의 사고 시 핵종 별 방출 분률이라는 용어를 사용한다. 이 용어의 정의는 피복재만 손상되는 사고가 발생한 후 짧은 시간 내에 손상된 핵연료에서 일차 냉각재로 방출되는 특정한 핵종의 핵분열 생성물 원자 수를 그 시점에서 손상 핵연료에 저장되어 있는 특정한 핵종의 총 원자 수로 나눈 값이다.

PWR의 경우에는 설계기준 방사선원 항을 분석할 때, 사고 발생 시 갭에 존재하는 핵종이 순식간에 일차 냉각재로 방출된다고 가정한다. 하지만 금속 핵연료에는 갭이 없으므로 피복재가 손상되는 사고 발생 직후에 일차 냉각재로 나가는 양은 그리 크지 않을 것이므로 사고 후 일정한 시간 동안 방출되는 양을 고려하는 것이 필요하다. 본 논문은 일체형 원자로에 대한 설계기준 방사선원 항의 분석을 위해, 피복재가 손상된 후 2 시간 동안 일차 냉각재로 방출되는 핵분열 생성물의 양을 계산한다 [2]. 그러나 설계기준 방사선원 항을 분석할 때는 2 시간에 걸쳐 방출된다고 계산되는 심재의 핵분열 생성물이 사고 발생 직후 순식간에 모두 일차 냉각재로 유출된다고 가정한다.

4. 금속 핵연료에서의 누설률 계수

4.1 심재 내 핵분열 생성물 분포

금속 핵연료의 피복재 일부가 손상된 상황에서 원자로가 정상적으로 운전되는 경우, 심재에 존재하는 핵분열 생성물의 일부가 손상 부위를 통해 일차 냉각재로 누설된다. 이 때 누설되는 양은 보통 운전 경험을 통해 축적되는 냉각재의 비방사능 자료나 손상 핵연료에 대한 시험에서 얻은 자료를 분석하여 유도하는 것이 가장 적절하나, 현재 일체형 원자로용 금속 핵연료에 대해서는 이 자료가 거의 존재하지 않는 실정이다. 따라서 본 논문은 몇 가지 가정을 도입하여 누설률 계수를 예비적으로 평가하였다.

정상 가동 운전조건 하에서 금속 핵연료로부터 일차 냉각재로 누설되는 핵분열 생성물의 비율을 용이하게 분석할 수 있도록 다음과 같은 가정을 도입하였다:

- 정방형인 심재의 단면을 그림 3과 같이 동일한 면적을 가지는 반경이 a 인 원으로 변환한다. 본래 심재 한 변의 길이를 x 라 하면 반경 a 는 $x/\sqrt{\pi}$ 가 된다.
- 정상 가동 운전조건 하에서 핵분열 생성물은 반경 방향으로만 이동한다.

- 심재 단면적에서의 핵분열률은 시간에 무관하게 항상 일정하다.
- 심재 단면적 온도는 위치에 무관하게 동일하다. 실제 운전조건에서는 온도 분포는 parabolic 형태에 가까우나 이를 고려하면 확산계수가 반경 방향의 함수가 되므로 분석적인 해를 구하기 어렵다. 그러므로 다면 온도가 모두 동일하다고 가정한다.

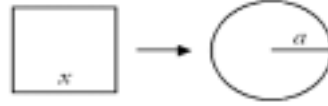


그림 3. 금속 핵연료 단면의 단순화.

상기 가정들을 이용하면 심재 단면에서의 핵분열 생성물에 대한 지배 방정식은 다음과 같이 표현된다:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = yF + D \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial c}{\partial r} \right) - \lambda c, \quad (1)$$

위 식에서

- c = 심재에서 핵분열 생성물의 농도 (atoms/cm³),
- t = 시간 (sec),
- y = 핵분열 당 생성되는 핵분열 생성물의 개수 (atoms/fission),
- F = 심재 단위 체적에서의 핵분열률 (fissions/cm³·sec),
- D = 심재에서 핵분열 생성물의 확산계수 (cm²/sec),
- r = 반경방향으로의 거리 (cm),
- λ = 핵분열 생성물의 붕괴상수 (sec⁻¹).

핵분열 당 생성되는 특정한 핵분열 생성물의 개수(y)에는 Direct fission yield와 Accumulated fission yield의 두 종류가 있다. Direct fission yield는 핵분열 직후에 생성되는 핵종의 개수이고, Accumulated fission yield는 Direct fission yield에 붕괴 사슬(Decay chain)에 의한 생성물 및 다른 핵종이 중성자를 흡수하여 생성되는 비율을 더한 값이다. (1)식에서의 y 는 Accumulated fission yield에 해당하는 값이다. 그리고 (1)식은 중성자 흡수에 의해 다른 핵종으로 변환되는 항을 고려하고 있지 않음을 유의해야 한다. 이 항을 고려하지 않으면 핵분열 생성물의 심재 내 농도인 c 가 커지므로 이 항을 고려하는 경우에 비해 피복재 손상 시 누설되는 양이 더 많다. 따라서 결과적으로 (1)식에 근거하여 계산하는 누설량은 보수적인 값이라고 할 수 있다.

일체형 원자로가 가동을 시작하여 몇 달 정도의 시간이 경과하면, 반감기가 몇 달 이상인 일부 핵종을 제외하고 대부분의 핵분열 생성물 농도는 시간에 무관한 평형 값에 도달한다. 그러면 $\partial c / \partial t$ 는 0이 되므로 (1) 식은

$$0 = yF + D \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial c}{\partial r} \right) - \lambda c, \quad (2)$$

이 되며, 이 때 경계조건은 다음과 같다:

$$c(0) = \text{finite}, \quad c(a) = 0. \quad (3)$$

(2)식을 풀면

$$c(r) = AI_0\left(\frac{r}{L}\right) + BK_0\left(\frac{r}{L}\right) + \frac{\nu F}{\lambda}, \quad (4)$$

위 식에서 A, B는 상수이고 I_0 및 K_0 는 각각 Modified Bessel function of the first kind 및 second kind이며 L 은 아래의 (5)식으로 정의된다:

$$L = \left(\frac{D}{\lambda}\right)^{1/2}. \quad (5)$$

(3)식의 경계조건을 이용하여 핵분열 생성물의 심재 내 농도 분포를 구하면

$$c(r) = \frac{\nu F}{\lambda} \left\{ 1 - \frac{I_0\left(\frac{r}{L}\right)}{I_0\left(\frac{a}{L}\right)} \right\}. \quad (6)$$

4.2 심재에서 일차 냉각재로의 누설률 계수 유도

금속 핵연료의 피복재가 손상되어 심재에서 일차 냉각재로 누설되는 핵분열 생성물의 비율은 핵분열 생성물이 누설되는 기구와 손상 부위의 크기, 심재 온도, 심재 연소도 등의 영향을 받는다.

본 논문에서는 심재 내 핵분열 생성물이 확산에 의해 일차 냉각재로 누설된다고 가정하였다. 손상 핵연료에서 핵분열 생성물이 누설되는 기구에는 원자 이동의 관점에서는 생성물의 확산, Recoil, Knock-out의 세 가지 기구가 있다. 그런데 Recoil 및 Knock-out에 의해 누설되는 양은 확산에 의한 양보다 매우 작기 때문에 무시할 수 있다 [3]. 이에 따라 본 논문에서는 확산에 의한 누설률만을 고려한다.

핵분열 생성물의 누설 관점에서 중요한 또 한가지 기구는 심재의 산화물이 직접 일차 냉각재로 떨어져 나오는 현상이다. 피복재의 손상 부위가 큰 경우, 냉각재에 노출된 심재의 산화가 활발하게 일어나고 이에 따라 심재의 산화물 일부가 냉각재로 떨어져 나오는 현상이 발생할 수 있기 때문이다. 이런 상황에서는 확산으로 방출되는 핵분열 생성물과 심재에서 분리되어 냉각수로 떨어져 나오는 심재 산화물에 포함된 핵분열 생성물이 공존하므로 누설률 분석 시 두 가지 현상을 모두 고려해야 한다. 하지만 손상이 미세한 균열에 의해 발생한 경우, 냉각재와 접촉하는 심재 면적이 작으므로 심재의 산화가 제한될 것이고 이에 따라 심재에서 분리된 산화물이 냉각재로 떨어져 나올 수 있는 통로 또한 작으므로, 심재 산화물이 분리되어 냉각재로 떨어져 나오는 현상은 발생하기 어렵다. 따라서 정상 가동 조건에서 발생하는 손상은 대부분 미세한 균열이라고 간주하여 본 논문은 확산에 의해 누설되는 양만을 다룬다. 만약 심재 산화물의 일부가 떨어져 나오면 이에 의한 누설률이 확산에 의한 누설률보다 더 클 가능성이 매우 높다.

손상 부위의 균열은, 그림 4와 같이, 금속 핵연료의 원주 방향 전체 둘레에 걸쳐 높이가 h 인 상태로 일정하게 존재하며 이 높이는 운전 시간(연소도)에 무관하게 일정하다고 가정한다. 실제 상황에서는 균열 부위의 위치보다는 면적이 누설률을 좌우하는 요소가 된다. 예를 들어 균열의 폭과 길이가 동일하다면, 균열이 원주 방향에 걸쳐 존재하든 아니면 축 방향에 걸쳐 존재하든 누설되는 양은 거의 같을 것이다. 따라서 상기 가정은 분석적인 해를 얻을 수 있게 도입한 가정이나 이를 통해 얻은 해는 손상 부위 길이만 같다면 실제 상황에도 적용할 수 있다.

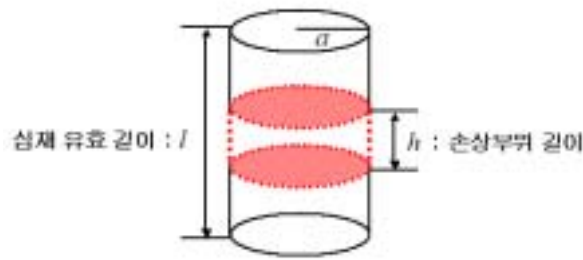


그림 4. 손상된 금속 핵연료 개략도.

상기 상황의 경우 확산에 의해 냉각재로 누설되는 단위 시간당 핵분열 생성물의 개수 R 은

$$R = 2\pi ah \cdot \left\{ -D \left(\frac{dc}{dr} \right) \Big|_{r=a} \right\}, \quad (7)$$

로 표시된다. (6)식과 (7)식을 결합하여 계산하면

$$R = 2\pi ah \cdot LyF \frac{I_1\left(\frac{a}{L}\right)}{I_0\left(\frac{a}{L}\right)}. \quad (8)$$

손상이 발생한 시점에서 손상 부위에 존재하는 핵분열 생성물의 총 원자 수를 I_d 라 하면

$$I_d = \pi a^2 h \cdot c_o. \quad (9)$$

위 식에서 c_o 는 핵분열 생성물의 심재 내 평균 농도이다 [4]. 그런데 c_o 는 심재의 연소도와 위치와 따라 변화하므로 본 논문에서는 심재 평균값을 사용하였다.

손상 부위에서의 누설률 f_d 는

$$f_d = \frac{R}{I_d} = \frac{2LyF}{a c_o} \cdot \frac{I_1\left(\frac{a}{L}\right)}{I_0\left(\frac{a}{L}\right)}, \quad (10)$$

로 정의된다. 제 3장에서 언급한 바와 같이, 누설률 계수는 금속 핵연료에 저장된 총 핵분열 생성물의 개수를 기준으로 정의되는 값이므로, 이 값을 f_{rod} 로 표현하면

$$f_{rod} = f_d \cdot \frac{h}{l}, \quad (11)$$

위 식에서

h = 손상 부위 길이 (cm),

l = 심재 유효 길이 (cm).

(10)식과 (11)식을 이용하여 누설률 계수를 계산하려면 각 핵종에 대한 D , λ , y , c_o 및 F 가 필요하다. 또한 손상 부위 길이인 h 도 요구된다.

4.3 핵분열 생성물 농도 및 물리 상수

핵분열 생성물의 종류는 약 300 가지 이상인데 각각의 물리적·화학적 성질에 따라 몇 가지 그룹으로 분류할 수 있다. PWR의 경우, 누설률 관점에서 핵분열 생성물을 다음의 6 가지 그룹으로 분류한다 [1]:

- Xe, Kr 기체
- I, Br, Rb, Cs
- Mo
- Te
- Sr, Ba
- 그 이외의 핵종

일체형 원자로에서도 상기 분류를 따른다. 일체형 원자로와 PWR 모두 U-235가 열중성자를 흡수하여 핵분열을 일으키므로 이 때 생성되는 핵분열 생성물의 종류 및 물리적·화학적 성질도 동일할 것이기 때문이다. 본 논문은 상기한 6 가지의 핵분열 생성물 그룹 중에서 첫째 그룹인 Xe 및 Kr 핵종에 대한 누설률을 평가하였다.

일체형 원자로에는 심재의 우라늄 함량이 33.9 %와 38.0 %인 두 종류의 핵연료가 장전될 예정이다 [5]. 일체형 원자로에 대한 분석에 의하면 두 종류의 핵연료에 대한 평균 핵종 농도 사이에 큰 차이가 없으므로 [4], 본 논문은 우라늄 함량이 38.0 %인 핵연료의 핵종 농도를 기준으로 삼았다. (10)식에 의하면 c_o 가 작을수록 보수적인 결과를 낳는다. 이에 따라 (10)식 및 (11)식을 이용하여 누설률을 계산할 때, 본 논문에서는 각 연소도에 대한 값들 중에서 가장 작은 값을 c_o 로 간주하였다.

그림 5는 우라늄 함량이 38.0 %인 금속 핵연료에 대해, 심재 단면적을 동일한 두께를 가지는 10개 영역(Region)으로 분할하여 계산한 경우, 각 영역에서의 Kr-85 핵종 농도를 심재 위치 및 연소도의 함수로 도시하고 있다. 영역 1은 심재 중심부를, 영역 10은 심재의 최외각을 나타낸다. 심재 외각에서의 핵분열 생성물 농도가 중심부에서의 농도보다 큰

것은 Power depression에 의해 외각에서의 출력이 높고 이에 따라 핵종의 생성률이 더 크기 때문이다.

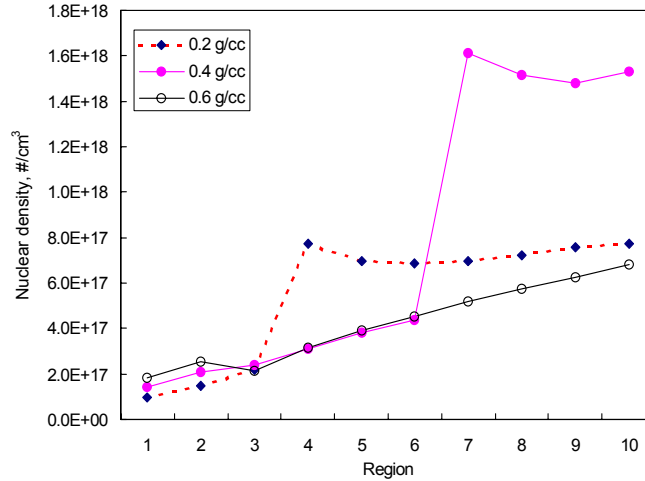


그림 5. Kr-85의 심재 위치 및 연소도에 따른 핵종 농도.

Xe 및 Kr 핵종 중에서 방사선원 항을 분석할 때 정상 운전 및 예상운전 과도 시에 취급하는 동위원소는 Kr에 대해서는 Kr-85, Kr-85m, Kr-87, Kr-88의 4 종류, 그리고 Xe에 대해서는 Xe-131m, Xe-133, Xe-133m, Xe-135, Xe-135m, Xe-137, Xe-138의 7 종류이다 [6]. 이에 따라 본 논문에서도 이 11가지 동위원소 만을 다루었다.

표 1에는 세 가지의 연소도 0.2, 0.4 및 0.6 g/cc에서 Xe 및 Kr의 핵종 농도 및 그 중에서 가장 작은 값인 c_o 를 제시하고 있다 [4]. 표 2는 위에서 언급한 11가지의 각 핵종에 대한 반감기, 붕괴상수, 그리고 핵분열 당 생성되는 원자 수를 제시한다.

표 1. Xe 및 Kr의 각 핵종 농도 ($atoms/cm^3$) [4].

	Xe 및 Kr의 핵종 농도			c_o
	0.2 g/cc	0.4 g/cc	0.6 g/cc	
Kr-85	6.84 E+17	1.10 E+18	5.16 E+17	5.16 E+17
Kr-85m	3.60 E+14	3.13 E+14	1.01 E+14	1.01 E+14
Kr-87	1.70 E+14	1.38 E+14	4.87 E+13	4.87 E+13
Kr-88	5.22 E+14	4.18 E+14	1.50 E+14	1.50 E+14
Xe-131m	2.41 E+15	3.65 E+15	5.56 E+14	5.56 E+14
Xe-133	1.19 E+17	1.06 E+17	3.57 E+16	3.57 E+16
Xe-133m	1.70 E+15	1.50 E+15	4.80 E+14	4.80 E+14
Xe-135	2.77 E+14	1.77 E+14	2.86 E+14	1.77 E+14
Xe-135m	5.09 E+13	4.06 E+13	1.47 E+13	1.47 E+13
Xe-137	5.34 E+13	4.42 E+13	1.52 E+13	1.52 E+13
Xe-138	1.70 E+14	1.36 E+14	4.88 E+13	4.88 E+13

표 2. Xe 및 Kr의 반감기, 붕괴상수 및 핵분열 당 생성되는 원자 수 [7].

	$T_{1/2}$	$\lambda (\ln 2 / T_{1/2})$ (sec^{-1})	y (atoms/fission)
Kr-85	10.76 yr	2.043 E-9	2.74 E-3
Kr-85m	4.48 hr	4.298 E-5	1.26 E-2
Kr-87	76.3 min	1.514 E-4	2.51 E-2
Kr-88	2.84 hr	6.780 E-5	3.57 E-2
Xe-131m	11.9 day	6.742 E-7	3.17 E-4
Xe-133	5.24 day	1.531 E-6	6.70 E-2
Xe-133m	2.19 day	3.663 E-6	1.95 E-3
Xe-135	9.14 hr	2.107 E-5	6.53 E-2
Xe-135m	15.3 min	7.551 E-4	1.21 E-2
Xe-137	3.82 min	3.024 E-3	6.11 E-2
Xe-138	14.1 min	8.193 E-4	6.37 E-2

4.4 핵종 별 누설률 계수

(10)식과 (11)식을 이용하여 f_d 및 f_{rod} 를 계산하려면 a , L 및 F 를 알아야 한다. 4.1절에서 제시한 바와 같이 심재 한 변의 길이를 x 라 하면 a 는 $x/\sqrt{\pi}$ 이므로, 심재 한 변의 길이가 0.41 cm인 금속 핵연료의 경우 a 는 0.231 cm이다. 그리고 L 은 (5)식에 의해 정의되므로 L 값을 얻으려면 핵분열 생성물의 확산 계수인 D 가 필요하다.

단위 체적 당의 핵분열률인 F 는 다음 방법으로 유도한다. 각 핵종의 농도를 계산하는데 사용된 평균 선형출력인 51.7 W/cm를 출력 밀도로 환산하면 307.6 W/cm³이다. 핵분열 당 발생하는 에너지는 190 Mev이므로 [5], 이 두 값을 이용하여 F 를 계산하면 1.01×10^{13} (fissions/cm³ · sec)을 얻는다.

4.4.1 확산 계수

Adda[8]와 Muller[9]는 고온에서 Zr-U 합금의 확산 계수를 Zr 함량의 함수로써 측정한다. 그들에 의하면 우라늄의 질량 비가 38%인 합금 (Zr-38%U) — 질량 비인 이 값을 원자 개수의 비로 환산하면 우라늄 원자 비가 20%이고 Zr 원자 비가 80% (Zr-20a/oU) — 에서의 자체 확산계수(self diffusion coefficient)는 다음과 같다:

$$D = D_o \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right), \quad (12)$$

위 식에서

$$D_o = 3.2 \times 10^{-4} \text{ (cm}^2/\text{sec)},$$

$$Q = 34,300 \text{ (cal/mole)},$$

$$R = 1,987 \text{ (cal/mole} \cdot \text{K)},$$

$$T = \text{온도 (K)}.$$

현재 Zr-U 합금에서 Xe 및 Kr의 확산계수에 대한 정보를 얻기가 쉽지 않으므로, 본 논문에서는 Xe 및 Kr의 확산계수가 Zr-U 합금에서의 자체 확산계수와 동일하다고 가정하였다. 이 가정은 Zr-U 합금을 사용하는 고속로용 금속 핵연료에서의 핵분열 기체 거동을 분석하는 경우에도 사용된 바 있다 [10,11].

피복재가 파손되면 주로 심재 외각 부위에 존재하는 핵분열 생성물이 일차 냉각재로 누설될 것이므로 확산계수는 외각 부위의 온도에 상응하는 값을 사용해야 한다. 그런데 평균 선형출력인 51.7 W/cm인 일체형 원자로에서 심재의 평균 온도는 348.5°C이다 [5]. 따라서 400°C를 심재 외각 부위의 온도라고 가정하면 보수적인 누설률을 얻을 수 있으므로, 본 논문에서는 (12)식으로 계산한 400°C에서의 값인 $2.321 \times 10^{-15} \text{ (cm}^2/\text{sec)}$ 을 Xe 및 Kr의 확산계수로 간주하였다.

4.4.2 손상 부위 길이

고속 핵연료의 피복재가 정상 운전조건에서 손상되는 경우 그 길이에 대한 정보는 현재 존재하지 않는다. 이에 따라 누설률 계산에 필요한 손상 부위의 길이는 외국의 시험에 근거하여 설정하였다. 이 시험은 손상 핵연료의 노내 거동을 파악하기 위해 조사되지 않은 4 개의 금속 핵연료봉에 면적이 20 mm²인 인위적인 결함(폭 0.5 mm, 길이 40 mm)을 만든 후 시험 원자로에 장전하여 수행되었다. 이에 따라 본 논문에서는 금속 핵연료의 손상 부위 길이가 3 mm라고 가정하였다. 이 경우 4.2절에 따라 금속 핵연료는 원주 방향 전체에 걸쳐 높이가 3 mm인 결함을 가지게 되므로 이 결함 부위의 면적은 49.2 mm²(4.1 mm x 4 x 3 mm)이며 이는 h/l 이 3/800임을 의미한다. 이 결함은 누설률 관점에서는 폭이 1 mm이고 길이가 약 50 mm인 결함과 동일하다.

인위적인 손상 핵연료를 약 300 일간 노내에서 연소시킨 후 조사후시험을 수행한 결과, 결함의 길이는 초기 값에 비해 최대로 3 배까지 증가하는 것이 발견되었다. 이는 누설률 계수를 추정할 때 결함의 성장을 고려해야 함을 의미하므로, 본 논문은 결함의 길이가 3 배 성장한다고 가정하여 누설률 계수의 계산에 필요한 h/l 을 9/800로 간주하였다.

4.4.3 누설률 계수

표 3은 400°C에서 Xe 및 Kr의 각 핵종에 대한 손상 부위에서의 누설률 계수($f_d(400^\circ\text{C})$) 및 핵연료봉 전체 저장량을 기준으로 한 누설률 계수($f_{rod}(400^\circ\text{C})$)를 제시하고 있다. 핵종에 따라 달리 나타나는 누설률 계수는 Xe-131m에 대한 값인 3.30×10^{-11} 에서 Kr-85m에 대한 값인 9.00×10^{-9} 사이에 걸쳐 존재한다. 따라서 본 논문은 Xe 및 Kr 두 핵종에 대한 누설률 계수 중에서 최대 값인 9.00×10^{-9} 를 일체형 원자로에서의 Xe 및 Kr 기체에 대한 누설률 계수로 삼았다.

PWR의 경우, 4.3절에서 언급한 6 가지의 핵분열 생성물 그룹에 대한 누설률 계수가 각

각 다르다 [1]. 금속 핵연료의 경우에도 각 그룹의 핵종에 대한 확산계수를 이용하여 위에서 Xe 및 Kr에 대해 적용한 방법으로 누설률 계수를 유도하거나 혹은 운전 경험을 통해 획득한 냉각재 비방사능으로부터 유도해야 한다. 그런데 현재 각 그룹의 핵종에 대한 확산계수도 존재하지 않고 또한 운전 경험에서 얻은 냉각재 비방사능 자료도 없는 상황이다.

이에 따라 본 논문에서는 울진 5,6호기 최종 안전성분석보고서[1]에 제시되어 있는 각 그룹에 대한 누설률 계수와 Xe 및 Kr 기체에 대한 누설률 계수의 비를 우선 계산하고, 각 그룹에 대한 이 비를 금속 핵연료에서의 Xe 및 Kr에 대한 누설률 계수인 9.00×10^{-9} 에 곱하여 금속 핵연료에서의 각 그룹에 대한 누설률 계수를 계산하였다. 결론적으로 표 4의 가장 오른쪽 열에 금속 핵연료에 대한 누설률 계수가 제시되어 있다.

표 3. Xe 및 Kr의 각 핵종에 대한 누설률 계수(f_{rod}).

	λ	D	y	C_o	$f_d(400^\circ C)$	$\frac{h}{l}$	누설률 계수 $f_{rod}(400^\circ C)$
Kr-85	2.043 E-9	2.321 E-13	2.74 E-3	5.16 E+17	4.94 E-10	9/800	5.55 E-11
Kr-85m	4.298 E-5	"	1.26 E-2	1.01 E+14	8.00 E-7	"	9.00 E-9
Kr-87	1.514 E-4	"	2.51 E-2	4.87 E+13	1.77 E-7	"	1.99 E-9
Kr-88	6.780 E-5	"	3.57 E-2	1.50 E+14	1.22 E-7	"	1.37 E-9
Xe-131m	6.742 E-7	"	3.17 E-4	5.56 E+14	2.92 E-9	"	3.30 E-11
Xe-133	1.531 E-6	"	6.70 E-2	3.57 E+16	6.39 E-9	"	7.20 E-11
Xe-133m	3.663 E-6	"	1.95 E-3	4.80 E+14	8.94 E-9	"	1.01 E-10
Xe-135	2.107 E-5	"	6.53 E-2	1.77 E+14	3.39 E-7	"	3.81 E-9
Xe-135m	7.551 E-4	"	1.21 E-2	1.47 E+13	1.26 E-7	"	1.42 E-9
Xe-137	3.024 E-3	"	6.11 E-2	1.52 E+13	3.08 E-7	"	3.45 E-9
Xe-138	8.193 E-4	"	6.37 E-2	4.88 E+13	1.92 E-7	"	2.16 E-9

표 4. 금속 핵연료 핵종의 각 그룹에 대한 누설률 계수(f_{rod}).

	울진 5,6호기에 대한 누설률 계수 [1]	울진 5,6호기에 대한 각 그룹 누설률 계수 <u>Xe, Kr</u> 누설률 계수	금속 핵연료에 대한 누설률 계수 (f_{rod})
Xe, Kr	6.5 E-8	1.0	9.0 E-9
I, Br, Rb, Cs	1.3 E-8	0.2	1.8 E-9
Mo	2.0 E-9	3.077 E-2	2.8 E-10
Te	1.0 E-9	1.538 E-2	1.4 E-10
Sr, Ba	1.0 E-11	1.538 E-4	1.4 E-12
그 이외의 핵종	1.6 E-12	2.462 E-5	2.2 E-13

5. 금속 핵연료에서 핵분열 생성물의 사고 시 핵종 별 방출 분률

금속 핵연료에서 핵분열 생성물의 사고 시 핵종 별 방출 분률은 3절에서 “어떤 사고로 인해 금속 핵연료의 피복재가 손상된 후 짧은 시간 내에 손상된 핵연료에서 냉각재로 방출되는 특정한 핵종의 핵분열 생성물 원자 수를 그 시점에서 손상 핵연료에 저장되어 있는 그 핵종의 총 원자 수로 나눈 값이다”라고 정의한 바 있다.

따라서 사고 시 핵종 별 방출 분률은, 4절에서 유도한 DNB를 초과하여 피복재의 손상만이 발생하는 사고 발생 시 손상 부위에서의 누설률 계수(f_a)에, 방출을 고려하는 시간(t_a) 및 심재의 전체 유효 길이(l)에 대한 손상 부위의 길이(h_a)의 비율인 h_a/l 을 곱하여 얻을 수 있다. 사고 시 핵종의 방출 분률을 $f_{accident}$ 로 표기하면

$$f_{accident} = f_a \cdot t_a \cdot \frac{h_a}{l} . \quad (13)$$

(13)식으로 방출 분률을 계산하는 것은 사고가 발생하여 피복재가 손상되어도 원자로가 정지되지 않고 계속해서 가동됨을 의미한다. 즉 피복재가 손상된 상황에서도 출력이 정상적으로 생산되고 따라서 심재 온도가 계속 높은 상태로 유지되어 핵분열 생성물의 확산이 잘 일어나는 상황이라는 의미이다. 그러므로 (13)식으로 계산되는 방출 분률은 사고가 발생하면 원자로가 정지될 가능성이 많은 실제 상황에서의 방출 분률보다 큰 값으로 나타날 것이다.

5.1 사고 시 손상 부위 온도

일체형 원자로에서 DNB가 발생하는 경우 심재 온도가 어느 정도까지 상승하는가에 대해 최근에 분석한 결과는 존재하지 않는다. 하지만 과거에 DNB를 포함한 온도가 상승하는 사고를 과거에 분석한 결과에 따르면, 정상 운전 시 일체형 원자로에 장전된 전체 금속 핵연료 심재의 노심 평균온도는 345°C(618 K), 심재 중심온도는 543°C(816 K)인 반면, 온도가 증가하는 사고가 발생하는 경우에는 금속 핵연료 심재의 노심 평균온도는 367°C(640 K), 심재 중심온도는 622°C(895 K)로 추정된다.

현 단계에서는 아직 DNB에 대한 상세한 분석이 수행되지 않은 상태이다. 따라서 앞으로 추가 분석이 수행되면 심재의 평균온도 및 중심온도가 증가할 가능성이 있으므로 이를 고려해야 한다. 일체형 원자로의 일차 냉각재 평균 온도는 292.5°C이므로 [5], 사고 시 심재 중심온도인 622°C와의 온도 차이는 329.5°C이다. DNB 상세 분석 시 추가적으로 증가하는 온도를 329.5°C의 5%로 가정하면 이 값은 16°C이다. 결과적으로 본 논문에서는 622°C에 16°C를 더한 값인 638°C를 일단 DNB 발생 시의 심재 중심온도로 간주하였다.

사고 시 핵종 방출의 관점에서는 심재 중심온도보다 심재 평균온도가 중요하다. 본 논문에서는 보수적인 분석을 위해 심재 중심온도가 심재 평균온도와 동일하다고 가정하였다.

5.2 사고 시 손상 부위에서의 누설률 계수

(10)식, (12)식 및 $f_d(400^\circ C)$ 을 이용하여, 심재 평균온도가 $638^\circ C$ 일 때의 누설률 계수(f_a)를 계산하면 (14)식으로 표현된다:

$$f_a(638^\circ C) = f_d(400^\circ C) \cdot \frac{D(638^\circ C)}{D(400^\circ C)}. \quad (14)$$

$f_d(400^\circ C)$ 의 값도 표 3에서와 같이 핵종의 종류에 따라 다르다. 정상 운전 시의 누설률 계수와 마찬가지로, Xe 및 Kr 핵종 중에서 최대 누설률을 가지는 Kr-85m에 대한 $400^\circ C$ 에서의 누설률을 Xe 및 Kr 핵종에 대한 누설률로 간주한다. 따라서 $f_d(400^\circ C)$ 는 9.0×10^{-9} 이며, (12)식에 의해 $D(638^\circ C)/D(400^\circ C)$ 는 813이다. 그러므로 $638^\circ C$ 에서의 $f_a(638^\circ C)$ 는 7.32×10^{-6} 이 된다.

울진 5,6호기 최종안전성 분석보고서는 사고 시 취급하는 핵종 및 그에 대한 깎 내의 핵종 별 존재 비율을 분석할 때 Regulatory Guide 1.195의 분류를 따르고 있다 [12]. 이 분류에 의하면 Xe 및 Kr 핵종 중에서 Kr-85에 대한 값을 제시하므로, 금속 핵연료에서도 Kr-85에 대한 값을 제시한다. 사고 시 손상 부위에서 Kr-85의 누설률 계수를 상기 분석으로 유도한 Kr-85m에 대한 값과 동일하다고 가정하여 본 논문에서는 Kr-85에 대한 누설률 계수를 7.32×10^{-6} 로 제시하였다.

5.3 사고 시 방출 고려 시간

금속 핵연료에서의 사고 시 핵종 별 방출 분률에 대한 3.2절의 정의에 근거하여 (13)식으로 방출 분률을 계산할 때, 방출을 고려하는 시간인 t_a 를 2 시간(7200 초)으로 가정하였다 [2]. 이 가정은 피복재가 손상된 상태에서도 원자로가 정지하지 않고 계속해서 가동되어 심재 온도가 5.1절에서 논의한 온도로 유지되고 있음을 의미한다. 그러나 실제 상황에서는 DNB가 발생하면 원자로가 정지될 가능성이 많으므로, 짧은 시간 내에 심재 온도가 최고 온도에 도달한 후 점차 감소하여 심재 온도가 2 시간의 대부분에 걸쳐 5.1절에서 언급한 온도보다 낮은 상태로 유지될 것이다.

5.4 사고 시 손상 부위 길이

사고 시 손상 부위의 길이 또한 PWR에서의 사고 시 핵종 별 방출 분률에 의한 3.2절의 정의를 참고해야 한다. 이 정의에 의하면 DNB를 초과하여 핵연료 손상이 발생하는 사고 혹은 핵연료 취급 사고를 고려한다. 따라서 DNB가 발생하거나 핵연료 취급 사고 시에 과연 손상이 발생하는 부위의 길이가 어느 정도인가에 대한 정보나 예측이 필요하다.

핵연료 취급 사고 시의 손상 부위 길이는 사고의 종류에 따라 다를 것이기 때문에 이에 대한 데이터베이스가 확보되기 전에 어떤 특정한 값을 선정하기는 어렵다. 이에 따라 보수적인 계산을 위해 본 논문에서는 h_a/l 이 1이라고 가정하였다. 즉, DNB가 발생하면 금속 핵연료의 피복재 전체가 손상되어 심재의 전 표면이 일차 냉각재에 완전히 노출된다고 가정하였다.

5.5 사고 시 핵종 별 방출 분률

5.5.1 Kr-85에 대한 방출 분률

Kr-85의 방출 분률은 (13)식으로 유도된다. 손상 부위에서의 누설률 계수(f_a)는 7.32×10^{-6} , 방출 시간(t_a)은 7200 초, 심재 유효 길이에 대한 손상 길이 부위의 비율(h_a/l)은 1이다. 따라서 이 값들을 이용하여 (13)식으로 계산하면 Kr-85의 방출 분률은 0.053이 된다.

5.5.2 다른 핵종에 대한 방출 분률

Kr-85에 대한 방출 분률을 기준으로, 누설률 계수에 대해 적용한 방법을 이용하여, 타 핵종에 대한 방출 분률을 유도하였다. 울진 5,6호기 최종 안전성분석보고서 [1] 및 Regulatory Guide 1.195 [12]에 제시되어 있는 각 그룹에 대한 겹 방사능 분률과 Kr-85에 분률의 비를 우선 계산하고, 각 그룹에 대한 이 비를 금속 핵연료에서의 Kr-85에 대한 방출 분률인 0.053에 곱하여 금속 핵연료에서의 각 그룹에 대한 방출 분률을 계산하였다. 결론적으로 표 5의 가장 오른쪽 열에 금속 핵연료에서의 방출 분률에 대한 계산 결과가 제시되어 있다.

표 5. 사고 시 핵종 별 방출 분률($f_{accident}$).

	울진 5,6호기에 대한 Non-LOCA에 대한 겹 방사능 분률 [1]	울진 5,6호기에 대한 각 그룹 방출 분률 Kr-85 방출 분률	금속 핵연료에 대한 핵종 별 방출 분률 ($f_{accident}$)
Kr-85	0.10	1.0	0.053
I-131	0.08	0.8	0.042
기타 불활성 기체	0.05	0.5	0.027
기타 할로젠	0.05	0.5	0.027

6. 요약

일체형 원자로의 예상(혹은 운전기준) 방사선원 항과 설계기준 방사선원 항을 계산하는데 필요한 금속 핵연료에서의 누설률 계수와 사고 시 핵종 별 방출 분률에 대해 예비적으로 평가한 값을 표 6 및 표 7에 제시하였다.

표 6. 금속 핵연료에 대한 누설률 계수.

	금속 핵연료에 대한 누설률 계수
Xe, Kr	9.0 E-9
I, Br, Rb, Cs	1.8 E-9
Mo	2.8 E-10
Te	1.4 E-10
Sr, Ba	1.4 E-12
그 이외의 핵종	2.2 E-13

표 7. 금속 핵연료에 대한 사고 시 핵종 별 방출 분율.

	금속 핵연료에 대한 핵종 별 방출 분율
Kr-85	0.053
I-131	0.042
기타 불활성 기체	0.027
기타 할로겐	0.027

감사의 글

본 논문은 과학기술부가 후원하는 중장기 원자력 연구개발 과제의 일환으로 작성되었습니다.

참고문헌

- [1] 울진 5,6호기 최종 안전성분석보고서.
- [2] Private Communication with KOPEC.
- [3] B. J. Lewis, A. Husain, Journal of Nuclear Materials 312 (2003) 81.
- [4] SRD/FD-03074M, 일체형원자로 계통설계과제, 2003년 8월.
- [5] SRD/RF-03011M, 일체형원자로 계통설계과제, 2003년 3월.
- [6] APR1400 SSAR, Chapter 11.
- [7] 한국 핵자료연구회, <http://atom.kaeri.re.kr/>.
- [8] Y. Adda, J. Philebert, H. Faraggi, Revue DeMetallurgie 54 (1957) 597.
- [9] N. Muller, Z. Metallk 50 (1959) 652.
- [10] Takanari Ogata et al., Journal of Nuclear Materials 230 (1996) 129.
- [11] C. B. Lee, D. H. Kim, Y. H. Jung, Journal of Nuclear Materials 288 (2001) 29.
- [12] Methods and Assumptions for Evaluating Radiological Consequences of Design Basis Accidents at Light-Water Nuclear Power Reactors, Regulatory Guide 1.195, US NRC, May 2003.