

UO₂ 핵연료봉 성능분석코드 INFRA 개발 Development of UO₂ Fuel Rod Performance Analysis Code, INFRA

이찬복, 방제건, 김대호, 김영민, 양용식, 정연호
한국원자력연구소
대전시 유성구 사서함 105 호, 305-600

요 약

고연소도 UO₂ 핵연료봉 성능해석코드인 INFRA를 개발하였다. UO₂ 핵연료의 노내 거동에서 고연소도에서 새로이 발생하거나 다른 경향을 보이는 현상들에 대해 새로운 성능 모델들을 개발하였다. 소결체의 Rim 미세구조의 생성과 영향을 분석하는 모델들, 피복관의 부식 및 크립 모델, 그리고 유한요소법에 의한 기계적해석 모델 등을 개발하였다. INFRA 코드는 U-235 농축도 10 w/o 및 연소도 100 MWD/kgU-rod avg. 까지 UO₂ 핵연료봉의 성능 분석에 사용할 수 있을 것이다.

ABSTRACT

High burnup UO₂ fuel rod performance analysis code, INFRA was developed. Fuel performance models such as models to analyze the effects of rim microstructure, cladding corrosion and creep models, and finite element mechanical analysis model were newly developed for the analysis of fuel behavior which occurs or becomes more important at high burnup. INFRA code is expected to analyze UO₂ fuel rod behavior up to 100 MWD/kgU-rod avg. burnup and 10 w/o U-235 enrichment.

1. 개 요

핵연료봉 성능분석코드는 노내에서 연소되는 핵연료봉의 전반적인 거동을 예측한다. 핵연료봉이 노내에서 연소하면서 소결체 및 피복관은 시간 혹은 연소가 진행됨에 따라 다양한 열적/기계적 거동 변화가 일어난다. 핵연료봉의 많은 성능 인자들은 서로 영향을 주기 때문에 전산 코드를 통해서만 핵연료봉의 전반적인 노내 거동을 예측할 수 있다. 핵연료의 성능 모델들은 대부분 실험 자료를 통해서 개발되는 경험적인 모델이다. 대표적인 경험적인 핵연료 성능 모델로는 핵분열기체의 방출, 연소된 소결체의 열전도도 변화, 피복관의 부식 및 크립 그리고 소결체와 피복관 간의 열전달계수 등이 있다.

핵연료봉 성능분석코드는 대개 10,000 ~ 20,000 Lines 혹은 100 ~ 200 Subroutines으로 구성된 FORTRAN 프로그램이다. 기존의 핵연료봉 성능분석코드들을[1,2,3] 분석해 보면, 성능

모델 및 핵연료 성질관련 모델이 대개 60 % 정도를 차지하며, 각 모델간의 상호 연결 및 코드의 입출력과 관련된 것 등이 약 40 %를 차지한다. 그 중에서 코드의 특성을 결정하는 핵연료의 주요 성능 모델은 20 여 개에 불과한데, 이들 성능 모델들의 차이로 인해 각 핵연료봉 성능분석코드의 특성이 나타난다.

핵연료성능분석코드, INFRA(INtegrated Fuel Rod Analysis)는 고연소도에서 새로이 발생하거나 경향이 변화하는 성능 인자들에 대한 모델들을 새로이 개발하여 사용하였으며, 고연소도 핵연료의 손상 거동에서 중요한 소결체-피복관의 기계적 상호작용을 정확하게 분석하기 위해 유한 요소해석 모듈을 추가하였다. INFRA 코드는 미래의 핵연료 개발 목표를 고려하여 U-235 농축도 10 %이상, 연소도 100 MWD/kgU-rod avg. 까지 적용이 가능하도록 개발되었다.

2. UO₂ 핵연료봉 성능분석코드 개발

고연소도 UO₂ 핵연료봉의 성능분석코드를 개발하기 위해 기존의 FRAPCON-3, CARO 및 FEMAXI 등의 코드들의 기능 및 성능 모델들을 분석하였다. 60 MWD/kgU-rod avg. 이상의 고연소도 핵연료의 성능 분석을 위해 고연소도에서 점차 중요해지는 성능모델과 기존의 성능 모델로써 고연소도 핵연료에 적용하는데 한계가 있는 모델을 도출하였다. 표 1은 핵연료봉의 성능인자 중에서 고연소도에 적용하기 위해 개선되어야 하거나 새로이 개발되어야 하는 성능 인자들을 보여준다.

표 1. 핵연료봉 성능 인자 분석

	성능 인자	고연소도용 모델 개선 필요 여부	비고
소결체	Power and Burnup distribution	o	정상 및 과도상태 Bubble swelling
	Fission Gas Release	o	
	Swelling	o	
	Densification	x	
	Thermal Conductivity	o	
	Creep	x	
	Restructuring	x	
	Relocation	x	
	Rim Effect	o	
피복관	Stress	o	FEM FEM Creepout 모델
	Strain	o	
	Creep	o	
	Growth	x	
	Fatigue	x	Mechanical property
	Corrosion	o	
	Hydriding	o	
	Ductility Degradation	o	

고연소도 핵연료의 소결체에서는 Rim 미세구조의 생성에 의한 영향과 핵분열기체 기포에 의한 팽윤 그리고 핵분열기체의 방출 등의 성능 모델에 대한 개발이 필요하였으며, 피복관에 있어서는 부식, 인장 응력 하의 크립 거동 및 기계적 성질 변화 등에 대한 모델의 개발

이 필요하였다. 또한 소결체-피복관의 기계적상호작용에 의한 피복관의 손상 가능성을 정확하게 분석하기 위해서는 유한요소해석법이 필요하게 된다. 다음은 INFRA 코드를 위해 새로이 개발된 주요 성능모델들을 기술한 것이다.

○ 반경방향 출력 및 연소도 분포 계산 모델

UO₂ 핵연료 소결체 내에서 반경방향 위치에 따라 중성자의 에너지 및 크기가 서로 달라서 국부적인 핵분열밀도 및 핵분열원소의 생성률이 변하는데, 고연소도 핵연료의 Rim Effects 등의 거동을 분석하기 위해서는 이에 대한 정확한 예측이 필요하다. 그리하여 소결체의 반경방향 위치별 국부 출력, 연소도 및 핵분열가능 핵종의 분포를 예측할 수 있는 RAPID(RAdial Power and burnup Prediction by following fissile Isotope Distribution in the pellet) 프로그램을 개발하였다[4]. RAPID 프로그램은 소결체 내에서 우라늄 및 플루토늄 동위원소 - U-235, U-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241 및 Pu-242 - 등의 핵분열가능 핵종들의 변화를 소결체 내의 위치, 연소도 그리고 U-235 농축도의 변화에 따른 영향을 모두 고려하여 계산한 후, 소결체 반경방향의 국부 연소도 및 출력 분포를 계산한다. RAPID 코드의 모델들은 상세 핵설계코드인 HELIOS에 기반하여 개발되었으며, U-235 농축도, 10 w/o 연소도 150 MWD/kgU-pellet avg. 까지 검증되었다.

한편, 장주기 및 고연소도 핵연료 노심의 잉여반응도 조절 및 노심 내의 출력 분포를 평탄하게 유지하기 위해 가돌리니아 가연성독봉이 경수로에 널리 사용되고 있다. 경수로에서 사용되고 있는 가연성독봉의 Gd₂O₃ 농도는 대개 4 ~ 8 w/o 정도이며, U-235의 농축도는 0.71 ~ 1.8 w/o 이다. Gd₂O₃/UO₂ 소결체는 Gd의 첨가로 인해 UO₂ 소결체와 비교하여 열전도도, 밀도 및 용융온도가 Gd의 농도에 비례하여 감소하기 때문에 정확한 성능 예측이 필요하다. 따라서, Gd 독봉의 반경방향 출력 및 연소도 분포를 예측하는 RAPID-GD 모델을 HELIOS 코드에 기반하여 개발하였다[5]. Gd 독봉은 연소도에 따라 Gd 농도의 변화가 심하고, Gd 농도에 따라 반경방향의 출력분포도 크게 변하기 때문에, 출력분포 예측 모델은 연소도의 크기에 따라 구분하여, Gd의 농도, 초기 U-235 농축도 및 연소도 변화에 따른 국부 출력분포 변화 모델식을 유도하였다.

그림 1은 INFRA의 예측치와 FRAPCON-3에서 사용되는 TUBRNP 모델의 예측치를 시험 자료와 비교한 것으로서, INFRA의 RAPID 모델이 실측치를 보다 잘 예측하고 있음을 알 수 있다.

○ 소결체 핵분열기체 팽윤 모델

UO₂ 소결체의 연소도가 증가함에 따라 누적된 핵분열기체에 의해 기포의 생성이 점차 증가하여, 기포에 의한 소결체의 팽윤 크기도 점차 증가하게 된다. 따라서 핵분열 기체에 의한 팽윤을 예측하기 위한 모델이 개발되었다. 핵분열기체 기포에 의한 팽윤은 기포간의 유착과 이동에 의해 성장된 기포의 크기에 비례하기 때문에, 시간과 온도에 따라 기포의 성장을 예측함으로써 기포 팽윤을 예측할 수 있다.

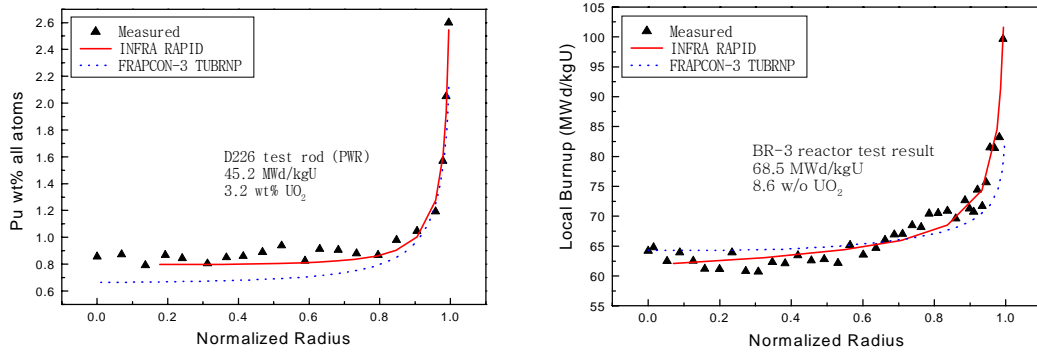


그림 1. 핵연료 반경방향 Pu 핵종 및 연소도 분포 비교

조사된 핵연료의 아닐링 시험자료에 근거하여 핵분열기체에 의한 팽윤을 연소도, 시간 및 온도의 함수로 예측하는 경험식을 다음과 같이 유도하였다[6].

$$\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_g = 5.4 \cdot BU^{1.157} \cdot \left[t \cdot \text{EXP}\left(\frac{-59,700}{T}\right) \right]^{0.157}$$

그림 2는 INFRA 코드의 기포 팽윤의 예측치를 보여주는데, 연소도가 증가할수록 기포 팽윤의 크기가 점차 증가하고 있다.

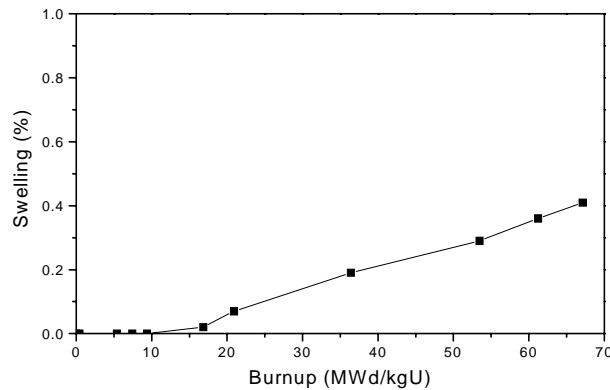


그림 2. 연소도에 따른 INFRA 코드의 기포 팽윤 예측

o 열전도도 모델

소결체의 열전도도는 핵연료의 온도 및 핵분열기체방출 등의 열적 거동을 결정하는 중요한 인자로서 그 동안 많은 모델들이 개발되어 사용되어 왔다. INFRA 코드에서는 기존의 Lucuta 모델[7] 및 Halden 모델[8] 외에 새로운 열전도도 모델을 개발하였다. EPRI가 주관한 NFIR(Nuclear Fuel Industry Research) 국제공동연구프로젝트에서 수행한 조사된 UO_2 소결체의 아닐링 시험시의 열확산계수 측정 자료를 분석하여, 조사된 UO_2 소결체의 열전도

도 모델을 다음과 같이 개발하였다[9].

$$\lambda = f_{sfp} f_{fg} f_{rd} f_p \lambda_0$$

여기서,

$$f_{sfp} = \frac{10.152 + 0.0762T}{10.152 - 4.8054BU^{0.5} + 1.563BU + (0.0762 + 4.724 \times 10^{-3} BU^{0.5} - 8.624 \times 10^{-4} BU) \cdot T}$$

$$f_{fg} = \frac{10.152 - 4.8054BU^{0.5} + 1.563BU + (0.0762 + 4.724 \times 10^{-3} BU^{0.5} - 8.624 \times 10^{-4} BU) \cdot T}{10.152 - 1.423BU^{0.5} + 1.6072BU + (0.0762 + 3.043 \times 10^{-3} BU^{0.5} - 8.066 \times 10^{-4} BU) \cdot T}$$

$$f_{rd} = \frac{1}{4.0413 \exp(31.598/T) - 3.1186}$$

$$\lambda_0 = \frac{1}{(0.0375 + 2.165 \times 10^{-4} \cdot T)} + \frac{4.715 \times 10^9}{T^2} \exp\left(-\frac{16361}{T}\right)$$

여기서,

λ = thermal conductivity of irradiated UO_2

λ_0 = thermal conductivity of unirradiated 100 % dense UO_2

f_{sfp} = factor for solid fission products

f_{fg} = factor for gaseous fission products

f_{rd} = factor for radiation damage

f_p = factor for porosity

그림 3은 열전도도 모델에 따른 핵연료 중심온도의 변화를 보여준다. 연소도 25 MWD/kgU, 36 MWD/kgU 및 60 MWD/kgU의 3 종류의 조사된 핵연료로부터 측정된 열확산계수 자료에 근거하여 개발된 KAERI 모델이 온도를 가장 높게 예측하고 있다.

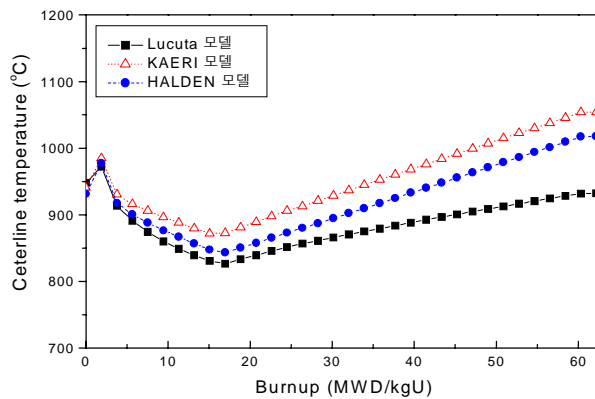


그림 3. 열전도도 모델에 따른 핵연료 중심 온도의 변화

한편, 고연소도 UO_2 소결체의 외곽에 형성되는 Rim 미세구조 영역에서는 핵분열기체원자들이 기지(Matrix)로부터 대부분 석출되어 기포를 형성하는데, 연소도 크기에 따라 기포에 의한 기공도가 5 - 15 % 정도 된다. 따라서 Rim 미세구조 영역에서의 열전도도는 조사된

일반적인 UO_2 의 열전도도와는 다른 거동을 보인다. 위의 KAERI 열전도도 모델은 이러한 Rim 영역에서의 열전도도를 다음 식으로부터 구할 수 있다.

$$\lambda_{rim} = f_{sfp}^{rim} f_{rd} f_p^{rim} \lambda_0$$

따라서 KAERI 열전도도 모델은 조사된 UO_2 소결체 뿐만 아니라 Rim 영역에서의 열전도도까지 예측할 수 있는 유일한 열전도도 모델이다. 분석 결과, 고연소도 UO_2 소결체의 Rim 영역에서 기지로부터의 핵분열기체의 소멸 현상은 기포 기공도에 의한 열전도도 감소의 영향을 상당히 보상하고 있음을 확인하였다[9].

○ 소결체 Rim 생성 모델

고연소도 UO_2 핵연료의 가장자리에 형성되는 Rim 미세구조의 생성에 대한 모델링이 수행되었다. 핵연료 소결체 내에서 고 운동에너지를 지닌 핵분열생성물의 이동경로를 따라서 매우 작은 크기($\sim 10^{-9}$ m)의 기포들이 생성되는데, 핵분열기체의 밀도가 임계치 이상이 되면, 생성된 기포들은 서로간의 결합 및 주위의 기체원자들의 확산을 통한 이동으로 인해 기포의 크기가 증가하여 안정화된다. 그리하여 핵분열기체 기포가 생성되고, 이로 인해 소결체의 결정립이 미세화되는 Rim 미세구조가 형성된다. 기체원자의 결정립내의 밀도는 온도, 핵분열밀도 및 결정립 크기에 의존한다. 온도가 증가할수록 결정립내의 기체원자의 밀도는 감소하며, 핵분열밀도 및 결정립 크기가 클수록 결정립 내의 기체원자의 밀도는 증가한다 [10].

그림 4는 Rim 미세구조가 기체원자밀도 5.1×10^{26} atoms/m³ 에서 생성된다고 가정할 때, 온도, 결정립크기 및 핵분열밀도의 변화에 따라 Rim 미세구조가 생성되는 국부연소도의 크기를 보여준다.

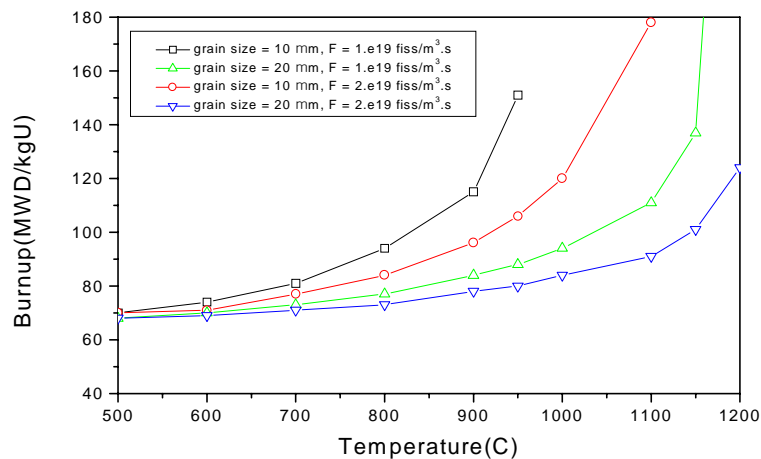


그림 4. 온도 변화에 따른 Rim 미세구조 생성 임계연소도

700 °C 이하의 온도에서는 국부연소도 80 MWD/kgU 이하에서 생성되지만, 온도가 1000 °C 이상일 경우에는 핵분열기체의 방출로 인해 Rim 미세구조가 생성되지 않는 것으로 나타났다. 이러한 예측 결과는 여러 핵연료 연소시험에서의 연소도 크기와 Rim 영역의 두께 측정자료들과 비교한 결과 일관성이 있음을 확인하였다[10]. 즉, Rim 미세구조의 생성은 국부적인 연소도의 크기에 의존하는 것이 아니라, 결정립 내에서의 기체 농도의 크기에 의존한다. 따라서 UO₂ 핵연료가 비록 70 MWD/kgU-rod avg. 이상으로 연소되더라도, Rim 미세구조가 생성되는 영역은 온도가 낮은 소결체 외곽 영역으로 제한될 것으로 예상된다.

○ 피복관 Creep-out 모델

고연소도에서 핵연료봉의 내부압력은 핵분열생성기체의 방출로 증가하게 되어 고연소도에서 외부 냉각수압력을 초과할 수 있다. 그리하여 피복관에 인장응력이 작용하여 피복관은 Creep-out 현상을 일으킨다. 피복관의 Creep-out은 핵연료봉의 Lift-off 현상과 - 지속적인 핵연료봉 내압의 증가로 인해 피복관과 소결체 사이의 갭이 커지는 현상- 관련되어 핵연료봉의 건전성에 영향을 줄 수 있다. 따라서 피복관의 creep-out을 정확히 예측할 수 있는 모델을 개발하였다. 기존의 피복관 Creep-down 모델에 기반하여, Halden 연구로에서 수행된 피복관 Creep-out 시험자료를 분석하여 새로운 크립 상수들을 유도하여 피복관 creep-out 모델을 개발하였다[11].

그림 5는 개발된 피복관 Creep-out 모델이 Halden 연구로의 HWR-532 측정치를 잘 예측하고 있음을 보여 주고 있다.

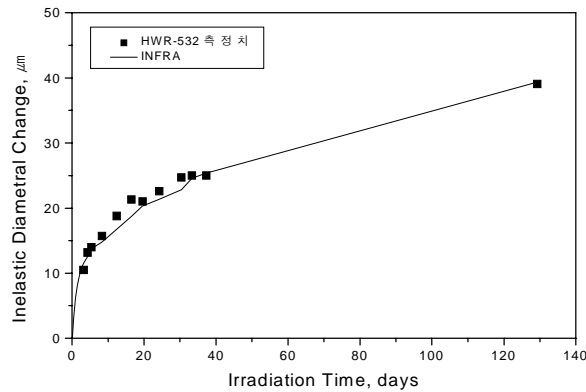


그림 5. 피복관 Creep-out 모델 검증

○ 피복관 부식 모델

Zircaloy 피복관의 부식 기구 및 부식기구에 영향을 주는 인자들을 고려하여, 고연소도 및 장주기 핵연료용 피복관 및 냉각수 화학 운전조건에 적용할 수 있는 부식 모델식을 다음과 같이 유도하였다[12].

$$\frac{ds^3}{dt} = C_1 \cdot \exp(-Q_1/RT), \quad \text{Pre-transition}$$

$$\frac{ds}{dt} = C_2 \cdot F_{Mat} \cdot F_{Flux} \cdot F_H \cdot \exp(-Q^*(C_{Li})/RT), \quad \text{Post-transition}$$

피복관의 재질 특성은 피복관의 제조사의 제조 공정들의 차이로 인해 서로 다를 수 있는데, 여러 제조 공정 변수들이 복합적으로 피복관의 부식에 영향을 주기 때문에 하나의 인자, F_{Mat} 로 정의하였다. 노내의 중성자 조사 효과는 F_{Flux} 인자로 나타내었고, 피복관의 Hydride의 영향은 F_H 인자로 나타내었다. 냉각수 내의 Li이 부식에 주는 영향으로 Li이 피복관의 산화층에 유입되어 산소의 확산계수를 증가시키는 부식기구에 기반하여, Li의 농도가 증가함에 따라 활성화에너지가 감소하여 피복관의 부식을 증가시키도록 아래와 같이 나타내었다.

$$Q^*(C_{Li}) = 28200 - A \cdot (C_{Li} - 0.5)$$

여기서 C_{Li} 는 냉각수내 Li의 농도(ppm)이며, A 상수 값은 43.4 (cal/mol-ppm)이다.

그림 6은 개발된 피복관 부식모델이 ANO-2 원자로의 피복관 부식 측정치를 잘 예측하고 있음을 보여 주고 있다.

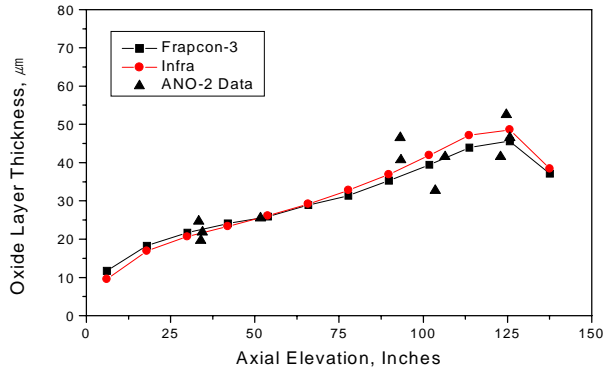


그림 6. 축방향 위치별 피복관 부식 두께 예측치 비교(연소도 52 MWD/kgU)

○ 연료봉 유한요소분석 모델

연소도 및 온도에 의존적인 핵연료의 물성치를 고려하여 핵연료의 열·탄·소성 변형에 의한 응력 및 변형율을 해석하는 유한요소(finite element analysis) 분석 프로그램을 개발하였다[11]. 개발된 프로그램은 상용 유한요소해석 프로그램인 Nisa II와 비교하여 서로 잘 일치함을 확인하였으며, INFRA 코드에 삽입하였다. 이 유한요소분석모델은 INFRA 코드로부터 분석에 필요한 온도 및 핵연료 물성치 등의 자료를 받아서 핵연료봉의 기계적 거동을 분

석한다. 그림 7에는 INFRA 코드에서의 유한요소분석모듈에 의한 기계적 거동 해석 절차를 나타내었다. FRACAS-I 은 FRAPCON-3에서 사용되는 단순한 기계적 해석 모듈이다. 그림 8에는 INFRA 코드의 유한요소해석 및 FRACAS-I 해석 결과들이 비교되어 있다. 유한요소해석법에 의한 피복관 응력 예측치가 FRACAS-I 보다 크게 예측하고 있다.

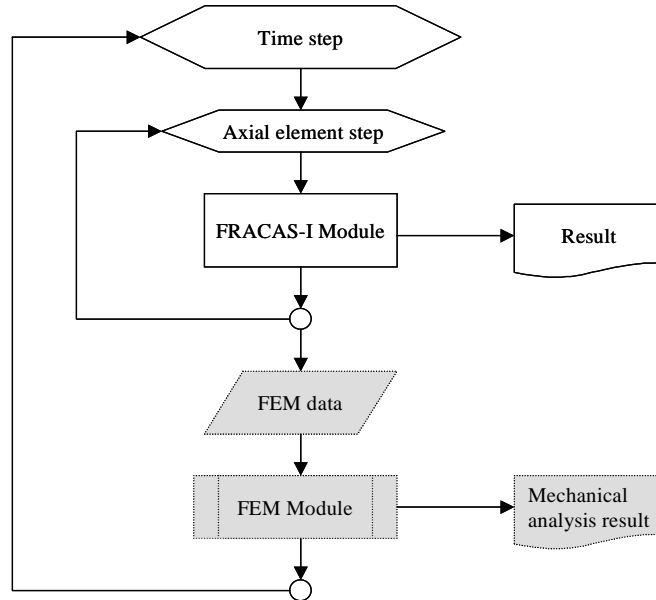


그림 7. INFRA 코드의 유한요소법 기계적 거동 해석 절차

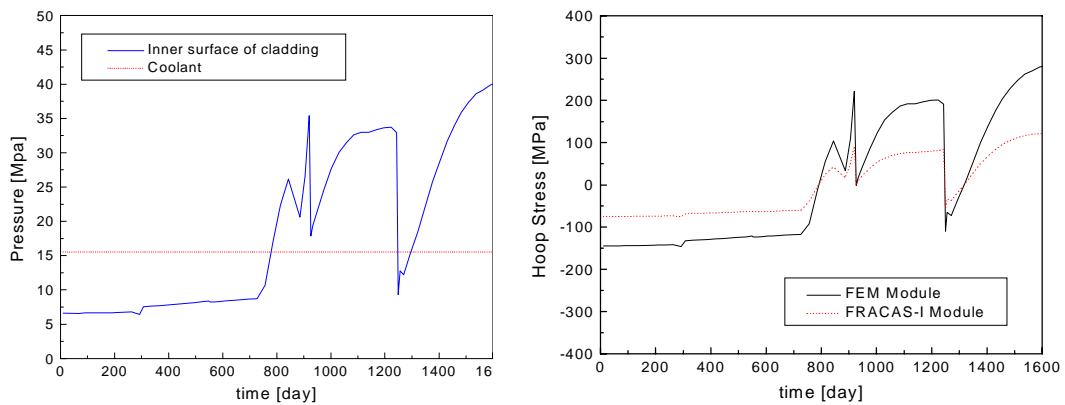


그림 8. 피복관의 응력 예측치 비교

3. 요약 및 결론

고연소도 UO_2 핵연료봉 성능해석코드인 INFRA 코드를 개발하였다. UO_2 핵연료의 노내 거동에서 특히 고연소도에서 새로이 발생하거나 영향력이 점차 증가하는 성능인자들에 대해

새로운 모델들을 개발하여 적용하였으며, 다른 성능 인자들에 대해서는 기존 코드들의 성능 모델들을 비교 분석하여 최적의 성능모델을 선정하여 적용하였다. 개발된 INFRA 코드의 주요 성능모델들은 국부출력 및 연소도 예측모델, 핵분열기체 팽윤 모델, 소결체 열전도도 모델, Rim 미세구조 생성 모델, 피복관 Creep-out 모델 및 부식 모델, 그리고 유한요소해석 모델 등이 있는데, 핵연료성능시험자료 및 상용 코드와의 비교를 통해 검증되었다. INFRA 코드는 U-235 농축도 10 w/o 및 연소도 70 MWD/kgU-rod avg. 이상의 UO_2 핵연료봉의 성능 분석에 사용할 수 있을 것이다.

후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

- (1) D.D. Lanning, et al, "FRAPCON-3 : Modifications to fuel rod material properties and performance models for high burnup application", NUREG/CR-6534, PNNL, 1997.
- (2) W. Hering, Code Manual CARO ver. D5.5, KWU, 1995.
- (3) M. Suzuki, "Light water reactor fuel analysis code FEMAXI-V(ver.1), JAERI-Data/Code 2000-030, JAERI, 2000.
- (4) C.B. Lee, et al, "RAPID model to predict radial burnup distribution in LWR UO_2 fuel", J. of Nuclear Mater., vol.282, p.196, 2000.
- (5) 이찬복 외, "가돌리니아 가연성독봉의 반경방향출력분포 예측모델 개발", 1999 추계 한국원자력학회 학술대회, 1999.
- (6) 김대호 외, "고연소도 핵연료의 핵분열 기체 팽윤 모델", 1998 추계 한국원자력학회 학술대회, 1998.
- (7) P.G. Lucuta, et al., A pragmatic approach to modeling thermal conductivity of irradiated UO_2 fuel : review and recommendations , J. of Nuclear Mater., vol. 232, p.166, 1996.
- (8) W. Wiesenack and T. Tverberg, "Thermal performance of high burnup fuel, in-pile temperature data and analysis", Proc. of 2000 Int. Top. Mtg. on LWR Fuel Performance, Park City, Utah, USA, 2000.
- (9) C.B. Lee, et al, "Development of Irradiated UO_2 Thermal Conductivity Model", IAEA Technical Committee Meeting on Nuclear Fuel Behavior Modelling at High Burnup and its Experimental Support, Windmere, UK, 2000.
- (10) C.B. Lee and Y.H. Jung, "An Attempt to Explain High Burnup Structure Formation Mechanism in UO_2 Fuel", J. of Nuclear Mater., vol.279, p.207, 2000.
- (11) 방제건 외, "핵연료 피복관 Creep-out 모델 개발", 1998 추계 한국원자력학회 학술대회, 1998.
- (12) 방제건 외, "Development of LWR Fuel Zircaloy-4 피복관 부식모델 개발", 1999 춘계 한국원자력학회 학술대회, 1999.
- (13) 권영두 외, "유한요소 분석모델 기술개발", KAERI/CM-399/99, 한국원자력연구소, 1999.