2000 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

고연소 핵연료에서 핵분열 생성물 방출 예측

Prediction of Fission Gas Release in High Burn-up Nuclear Fuel

이동욱, 정영석, 김용수

한양대학교
서울특별시 성동구 행당동 17

이찬복, 방제건, 김대호, 정연호

한국원자력연구소
대전직할시 유성구 덕진동 150

요 약

고연소 핵분열 생성물 방출 기구에 대한 독자적 모델 개발의 일환으로서 FRAPCON3를 포함, 최근까지 개발된 고연소용 역학적(mechanistic) 확산 모델을 이론적으로 비교 검토하고 고연소 방출에 영향을 미치는 인자를 도출하였다. 그 결과 각 확산 모델의 차이는 없지만 확산계수가 전체 핵분열 생성물 방출량에 결정적인 영향을 미치고 이 확산계수에 영향을 미치는 것은 연소도 향상 인자임이 확인되었다. 또한 결정립계에 쌓이는 핵분열 기체의 농도가 일정하다고 보면 전체 방출비 계산에 영향을 미치지 않지만 시간에 따라 변하는 양으로 보면 전체 핵분열 생성물 방출비가 영향을 받을 수 있는 것으로 나타났다. 뿐만 아니라 결정립 크기에 따라 각 모델들이 영향을 받는 것으로 나타났다. 그러나 기존 모델들은 결정립과 결정립계에 존재하는 버블의 성장과 형태 등을 고려하지 못하고 있을 뿐아니라 rim effect와 같은 국부적인 영향 또한 고려하지 못하고 있어 향후 이에 대한 철저한 이해가 필요할 것으로 판단된다.

Abstract

In this study, mechanistic diffusion models for high burn-up fission gas release prediction have been reviewed and examined theoretically and influential parameters on the prediction have been investigated. The results show that diffusion coefficient most strongly affects total fission gas release including burnup enhancement factor. If fission gas concentration accumulated in the grain boundary is considered to be constant, the concentration does not affect to the fractional release, however the release fraction is affected, if not. It is reviewed that each model depends on grain size. Most of models do not consider growth and shape of bubble in grain or grain boundary under irradiation as well as rim effect, which is considered to be very important in the high burn-up fuel behaviors. Therefore, in order to develop a high burn-up FGR models, it is necessary to include those high burn-up phenomena.

I. 서 론

원자력 발전소 운전시 핵분열 반응에 의해 생성되는 핵연료내 핵분열 생성물의 거동은 핵연료의 열적.기계적 성능에 중대한 영향을 미친다. 실제 많은 원자력 발전소의 운전 지침은 이들 핵분열 생성물의 과다 방출을 막기 위한 조처에서 출발하고 있다. 실제로 장시간의 원전 운전시 발생할 수 밖에 없는 핵연료 피복관의 파손에 따라 핵분열 생성물이 방출될 경우 발전소 내 1차 냉각수의 방사선 오염을 증가시키게 되는데 이 오염이 기준치를 넘을 경우 출력

감소 운전을 초래할 수 있고 그 오염정도가 심각할 경우 파손 핵연료의 대체를 위해 발전소 운전 중지 등의 사태등도 야기시킬 수 있다.

또한 부식 반응성이 높은 핵분열 생성물의 방출은 핵연료 피복관의 파손을 촉진시키게 되어 생성물 방출, 피복관 파손, 생성물 방출 가속 등 일련의 현상을 유도할 수 있다. 이처럼 핵분열 생성물 방출 거동에 관한 연구의 중요성에도 불구하고 국내의 연구는 독자적인 검증 자료없이 기존의 수입된 외국 전산코드를 그대로 사용하고 있고 이에 관한 연구 또한 전산코드내의 인자 변화 연구가 주종을 이루고 있는 실정이다.

한편, 미국 등 주요 원자력 선진국에서는 기존의 각종 운전 및 실험자료의 분산이 큰데다 현재 전환된 장주기, 고연소용 핵연료의 경우 중성자 조사에 의한 장시간 조사로 인해 핵연료의 미세구조가 크게 달라져 안전 운전을 위한 운전 여유도 잠식이 심각해 질 수 있는데 고연소, 장주기 연소에 의한 핵분열 생성물 방출 기구에 관한 연구를 활발히 진행시켜 그 연구결과들을 기존의 전산 코드내에 대체 삽입하고 있다.

따라서 본 연구에서는 이러한 고연소 핵분열 생성물 방출 기구에 대한 독자적 모델 개발을 위한 일환으로서 FRAPCON3를 포함, 최근까지 개발된 고연소용 역학적 확산 모델을 비교 검토하고 고연소 방출에 영향을 미치는 인자를 도출하였다.

II. 핵분열 생성물 방출 모델

핵연료 결정을 임의의 구라 가정하고 구 표면에 핵분열 생성물이 확산되어 나왔을 때 모두 방출한다는 가정에서 출발한 확산방정식을 사용하여 핵분열 생성물의 방출을 묘사하는 Booth 모델을 기초로 하여 ANS5.4 모델[2]은 정상상태 핵분열 생성물 방출비를 계산한다. ANS 5.4 모델의 인자는 local temperature, local burnup, time interval 들을 사용하고 있다. 안정한 핵분열 핵종의 경우 ANS 5.4 모델은 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$F = 4\sqrt{\frac{t}{p}} - \frac{3}{2}t \qquad \text{when } p^2 t < 1$$

$$F = 1 - \frac{6}{t}\sum_{n=1}^{\infty}\left\{\frac{1}{(np)^4}[1-\exp(-n^2 p^2 t)]\right\} \qquad \text{when } p^2 t > 1$$

여기서, $t = Dt/a^2 = D't$, $D' = \left|(D_0/a^2)\exp(-Q/RT)\right| \times 100^{Bu/28000}$, Q : 72,300 cal/mol, R : 1.987 cal/mol-^{0}K, D_0/a^2 : 0.61 sec^{-1}, Bu 는 국부적 연소도이다.

위 모델에서 사용된 , 활성화 에너지 (Q) 값은 400 60,000 MWd/MTU 연소도 영역의 경수로와 고속증식로 실험결과에 의한 값이다. 실제 이 모델에서 D와 a^2은 분리할 수 없고, 고연소 핵연료에서 버블 형성등이 고려되지 않아 저연소도 핵분열 생성물 방출에만 적당함에도

불구하고 현재까지도 NRC가 고연소 핵연료 성능 감사계산용으로 채택하고 있을 정도로 활용성이 높은 모델이다.

Booth 모델 이후 핵분열 기체 원자들은 결정립계에서 지속적으로 쌓이고 또한 조사중 핵분열에 의해 결정립계 버블내에 있는 원자들이 핵연료 기지내로 방출되는 현상들이 그림 1과 같은 전자현미경 사진으로 확인되었다. Speight 모델(1969)[3]은 이러한 현상을 고려하여 다음과 같은 두개의 지배방정식을 세워 문제를 풀었다.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = b + D\nabla^2 C - gC + bm$$
$$\frac{\partial m}{\partial t} = gC - bm$$

여기서 C는 국부적 핵분열 기체 평균 농도, m은 버블내에 있는 기체의 양, 그리고 g는 핵분열 기체가 버블에 포획될 확률, b는 버블내에서 핵연료 기지내로 방출되는 확률이다. 위 연립미분방정식을 풀고 유효확산계수, D_{eff}=bD/(b+g),를 도입하여 Booth 해와 같은 핵분열 생성물 방출비를 제안하였다. 그러나 그는 열역학적으로 결정립계가 perfect sink로서 작용한다 하더라도 결정립계 단위 면적에 존재하는 핵분열 기체의 양, Ngb,이 존재한다면 결정립계 단위 부피에 존재하는 핵분열 기체의 농도, $C_{gb}=b\lambda N_{gb}/2D$,를 최종 핵분열 생성물 방출비에 반영하면 아래와 같이 될 것이라고 제안하고 있다.

$$F - bN_{gb} \cong F_0\left(\frac{C_m - C_{gb}}{C_m}\right) = F_0\{1-(b+g)\,lN_{gb}\,/\,2Dbt\}$$

여기서 $C_m = bbt/(b+g)$ 이다.

Turnbull 모델(1974)[4]은 기존의 방출 역학(perfect sink)에 의해서 핵분열 기체가 방출되지 않고 결정립계 버블내에 일정양의 농도가 쌓이고 그 양이 포화농도를 넘어서게 되면 방출된다는 개념으로 위 모델들과 같은 지배방적식에 Speight가 제안한 결정립계에 존재하는 농도를 일정하다고 가정하여 다음과 같은 해를 도출하였다.

$$F = 4\sqrt{\frac{t}{p}} - \frac{3}{2}t + \frac{C_0 - C_{gb}}{bt}\left[6\sqrt{\frac{t}{p}} - 3t\right] \qquad \text{when } p^2 t < 1$$
$$F = 1 - \frac{6}{bt}\sum_{n=1}^{\infty}\left\{\frac{ba^2}{(np)^4} - \frac{C_0 - C_{gb}}{(np)^2}\right\}\{[1 - \exp(-n^2 p^2 t)]\} \qquad \text{when } p^2 t > 1$$

위에서 $C_0=C_{gb}$ 이면 Booth 해와 같게 된다.

Forsberg & Massih 모델(1985)[5] 역시 위에서 기술한 결정립계 경계면에 핵분열 생성기체가 존재한다는 개념을 사용하고 있지만 Turnbull과는 달리 그 양이 시간에 따라 변하는 양으로 가정하고 문제를 접근하였다. 구체적인 지배방정식은 아래와 같고 β(t)는 핵분열 생성기체의 생성률을 나타낸다.

$$\frac{\partial C(r,t)}{\partial t} = ß(t) + D\nabla^2 C(r,t) \qquad IC: C(r,0) = C_0$$

$$BC: C(a,t) = b(t) l N_{gb}(t)/2D(t) = C_{gb}, \quad \partial C/\partial t(0,t) = 0$$

Booth 는 핵분열 생성기체가 결정립계의 경계면에 도달하는 즉시 방출된다는 가정을 하였지만 Massih 는 경계면 핵분열 생성기체 버블내의 기체농도가 포화 농도 이상이 되어야 방출되는데 방출되는 양은 그때까지 쌓인 모든 핵분열 기체가 모두 방출된다고 하였다. 따라서 연료의 단위부피당 방출된 핵분열 생성기체의 양,F_R,은 다음과 같다.

$$F_R = fG_s$$

여기서,

Gs : 포화시 결정립 경계면내의 기체밀도

f : 핵분열 생성기체의 방출율

이 모델은 NRC 의 감사계산용으로 개발된 FRAPCON-III 에서 채택되고 있는 모델이다.

III. 결과 및 토의

위에서 기술한 역학적 확산 모델들은 결국 같은 지배방정식을 통해 유도되었기 때문에 본 연구에서는 가장 최근에 발표되고 실제 많은 전산코드들에서 고연소를 예측하는데 사용하고 있는 Massih 와 Turnbull 모델을 바탕으로 고연소 방출에 영향을 미치는 인자를 도출하였다.

연소도와 온도 의존성

각 모델의 연소도 및 온도 의존성을 살펴보기 위해 결정립 크기를 5micron 으로 고정하고 노내 조사온도 범위에서 수행하였다. 그 결과가 그림 2~4 에 나타나 있다. 그림 2 에서 보듯이 가장 보수적으로 가정하였던 ANS5.4 모델이 연소도가 높을수록 방출비가 급상승하였고 Massih 모델에 FRAPCON3 전산코드에서 사용하고 있는 매개변수들을 반영하여 계산한 결과 역시 고연소로 갈수록 방출비가 급상승하는 것으로 나타나 고연소 상황을 잘 모사하는 것으로 나타났다. 하지만 원래 제안된 모델의 방출비 경향과는 다르게 나타났다. 이는 표 1 에서 요약된 연소도 향상 인자 때문인 것으로 생각된다. 사실 이러한 보정인자는 원래 모델을 기술할 때 핵연료에서 일어나는 모든 노내 거동을 모사하지 못하였기 때문에 제안된 모델 자체로는 고연소시 높은 핵분열 생성물 방출비를 예측하기 어려워 조사시험 자료를 바탕으로 반영되고 있다. 다시말하면 지금까지 제안된 모델들은 핵연료 기지와 결정립계에 존재하는 버블의 성장이나 형태를 모사하지 못할 뿐만 아니라 조사중 핵연료에서 발생되는 국부적인 영향, 즉 rim effect 등이 모델에 반영이 되지 않았기 때문에 실제 고연소에서 방출비를 잘 예측하지 못한다.

따라서 표 1 에 나타난 보정인자를 각 모델에 반영하여 사용함으로서 실제 노내에서 발생되는 핵분열생성물 방출을 모사하고 있다.

결정립 크기

FRAPCON3 매개변수를 적용한 Massih 모델의 경우, 결정립 크기가 전체 방출비에 미치는 영향을 그림 5에 나타내었다. 결정립 크기가 2배 증가 했을 때 전체 방출비는 약 2배 정도 낮아졌다. 또한 Turnbull 모델의 경우 역시 비슷한 경향을 나타내었다.(그림 6) 이러한 결과는 결정립 크기에 따라 핵분열 생성물 방출량은 무시할 수 없을 정도의 영향을 받는 것으로 나타났다.

Resolution parameter : bl

Massih 모델은 결정립계에 존재하는 농도를 시간의 함수로 가정하였기 때문에 resolution parameter에 영향을 받는 것으로 나타났다. 그림 7에서 보듯이 resolution parameter가 커질수록 전체 핵분열 생성물 방출량은 연소도에 따라 감소하고 방출되는 시점이 변화하게 되지만 이 값이 작게되면 방출량은 커진다. 이는 결정립계에 쌓이는 양이 resolution parameter로 인해 포화농도를 넘어서는 시점이 지연되기 때문이다. 하지만 Turnbull 모델에서는 결정립계에 존재하는 농도를 일정하다고 가정하였기 때문에 결국 resolution parameter 와 결정립계 기체 농도, N_{gb}, 의 양이 전체 방출비에 영향을 미치지 않는다. 다만 Massih 모델에서는 결정립계에 쌓이는 양이 포화농도를 기준으로 방출되기 때문에 이 값이 변화하게 되면 처음으로 방출되는 시점만이 달라지게 된다.

확산계수

Massih 모델의 온도에 따라 전체 핵분열 생성물 방출비 변화는 그림 9에서 보여주고 있다. 노내 조사온도 범위인 1000^0C~1400^0C 에서 작업을 수행하였다. 온도가 높을수록 전체 방출비가 고연소로 갈수록 급상승하는 것을 알 수 있다. 이는 온도가 올라갈수록 핵분열 기체의 확산은 더욱더 빨라지게 되기 때문이다. 그런데 확산계수는 온도의 함수이므로 결국 확산계수 자체가 전체 핵분열생성물 방출비에 크게 영향을 미치게 된다. 확산계수의 변화에 따라 방출비의 변화는 그림 10에 나타나 있다. 따라서 향후 좀더 다양한 조사시험 자료를 토대로 확산계수를 기술하는 것이 요구된다. 그림 11에는 본 연구에서 기술한 각 연구자의 모델에서 사용한 확산계수의 범위를 나타내었다. 역시 예상한대로 ANS5.4 모델에서 사용하는 확산계수가 온도에 따라 가장 큰 값을 사용하고 있다.

IV. 결 론

최근 핵연료의 장주기 · 고연소 추세에 따라 고연소도에서 핵분열 생성물 방출기구에 대한 철저한 이해와 이에 따른 정확한 독자모델 개발의 필요성이 대두되고 있는 시점에서 본 연구에서는 FRAPCON3를 포함하여 최근까지 개발된 역학적 확산 모델을 역사적으로 면밀하게 분석하였을 뿐만 아니라 핵분열 기체 방출 역학이 서로 다르면서 고연소에서의

방출을 모사하는데 사용되는 모델(ANS5.4, Massih, Turnbull)을 대상으로 고연소 방출에 영향을 미치는 인자를 도출하였다.

핵분열 생성기체 방출에 영향을 미치는 인자별로는 결정립계에 존재하는 양이 일정하다고 가정하면 N_{gb}과 resolution parameter(bλ)는 전체 방출비에 영향을 미치지 않고 결정립계에 존재하는 양이 시간에 따라 변한다고 가정하게 되면 N_{gb}는 별다른 영향을 미치지 않지만 bλ의 값은 무시할 수 없을 정도로 전체 방출비에 영향을 미치게 된다. 또한 결정립 크기의 영향은 각 역학적 확산 모델 공히 고연소 방출에 큰 영향을 미치는 것으로 나타났다. 그리고 각 모델들의 차이를 확인하기 위해 똑 같은 확산계수와 보정인자를 이용하여 분석해 본 결과 별다른 차이가 없었다.(그림 12) 이는 결국 모든 모델들이 같은 지배방정식에 약간씩 다른 경계조건들을 이용해 모델을 기술하고 있기 때문에 모델의 차이는 미미한 것으로 생각된다. 하지만 경계조건을 노내 환경에 근사하게 적용하게 되면 결정립계에서 핵연료 기지내로 방출되는 양에 따라 전체 방출비가 다소 차이가 나게 된다. 따라서 결정립계에 쌓이는 양을 정확히 평가하는 것은 중요하다.

하지만 상기 모델들은 결정립과 결정립계에 존재하는 버블의 성장이나 형태를 고려하지 못하고 있고 핵분열 생성물 방출 역학에서 국부적인 영향 즉, rim effect 역시 고려하지 못하고 있다. 그리고 Massih 모델의 방출역학은 결정립계에 포화농도 이상이 되면 그동안 쌓인 양 전부가 방출된다고 가정하였지만 실제는 어느정도 남아 있는게 미세조직 관찰 결과 밝혀졌다. 따라서 향후 고연소용 핵분열 생성물 방출 모델 개발을 위해서는 이러한 현상들에 대한 철저한 이해와 고찰이 필요하다고 사료된다.

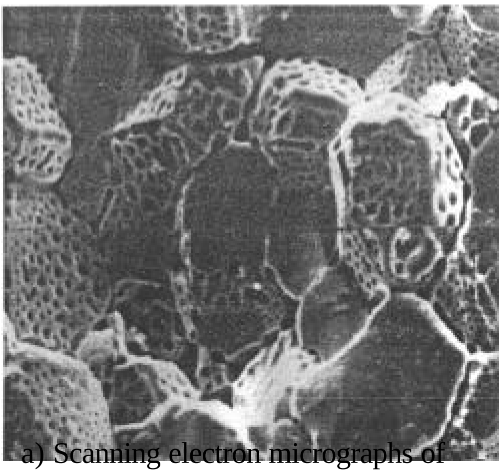
참고문헌

1. C.E. Beyer and C.R. Hann. Prediction of Fission Gas Release, *NUREG/CR-1213*, *PNL-3577*, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington, (August, 1979)
2. A.H. Booth, A Method of Calculating Fission Gas Diffusion from UO2 Fuel, *CRDC-721* (1957)
3. M. V. Speight, A Calculation on the Migration of Fission Gas in Material Exhibiting Precipitation and Re-solution of Gas Atoms Under Irradiation, *Nucl. Sci. Eng.* **37** (1969) 180-185
4. J.A. Turnbull, C.A. Friskney, et al, The Diffusion Coefficients of Gaseous and Volatile Species during the Irradiation of Uranium Dioxide, *J. Nucl. Mater.* **107** (1982) 168-184
5. K.Forsberg and A.R. Massih, Diffusion Theory of Fission Gas Migration in Irradiation Nuclear Fuel UO2, *J. Nucl. Mater.* **135** (1985) 140
6. D.D. Lanning, C.E. Beyer, C.L. Painter, 1997. FRAPCON-3: Modifications to Fuel Rod Material Properties and Performance Models for High-Burnup Application, *NUREG/CR-6534, PNNL-11513* **Vol.** 1,2,3

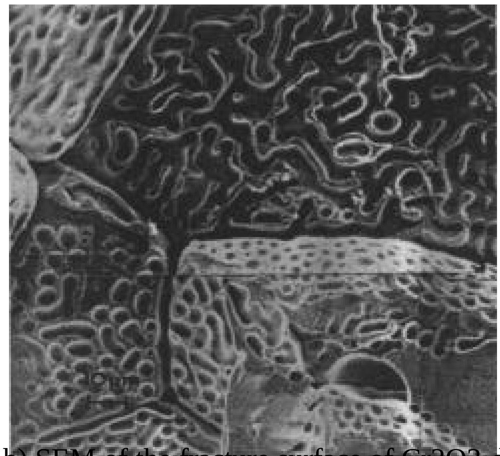
7. **이동욱, 양용식, 김용수, 이찬복, 방제건, 정연호, "고연소 핵연료에서 핵분열 생성기체 방출 예측: Two-Stage Booth 모델 대 조사시험 자료"**, '*99 한국원자력학회 추계학술발표대회 논문집* (1999 년 10 월, 서울)

표 1 Comparsion of the parameters used at each model

Model	Activation energy (cal/mol)	Burnup factor	Resolution, bλ	D_0/a^2 (sec^{-1})
ANS5.4	72,300	$100^{Bu-28000}$		61
Modified ANS5.4	49,700	$100^{(Bu-25000)/21000}$		22.1E-4
Forsberg & Massih	45,470		1.84E-14	8.56E-3
Modified Forsberg & Massih	57,742	$100^{(Bu-21000)/35000}$	1.47E-12	8.56E-3
KWU	31,792			
Modified KWU	27,818			
Turnbull			b: E-6~E-4 λ: E-8~E-5	



a) Scanning electron micrographs of fracture Surfaces at UO2 fuel irradiated to burnups of 0.28% FIMA at temperature of 1460^{0}C



b) SEM of the fracture surface of Cr2O3-doped UO2, Of grain size 70 micron, irradiated to 0.28% FIMA burnup at 1460^{0}C showing the formation of snake-like pores created by the coalesence of lenticular grain Face gas bubbles

그림 1. Scanning electron micrographs of fracture surface

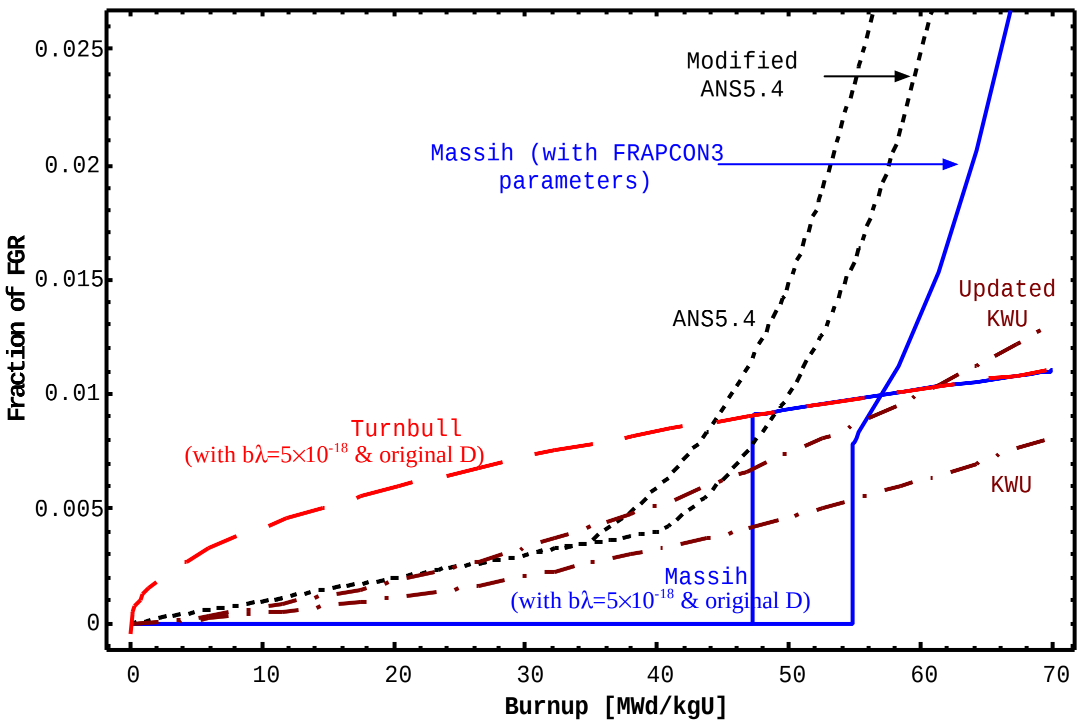


그림 2. Fraction of FGR vs. burnup of each model at 1000^{0}C

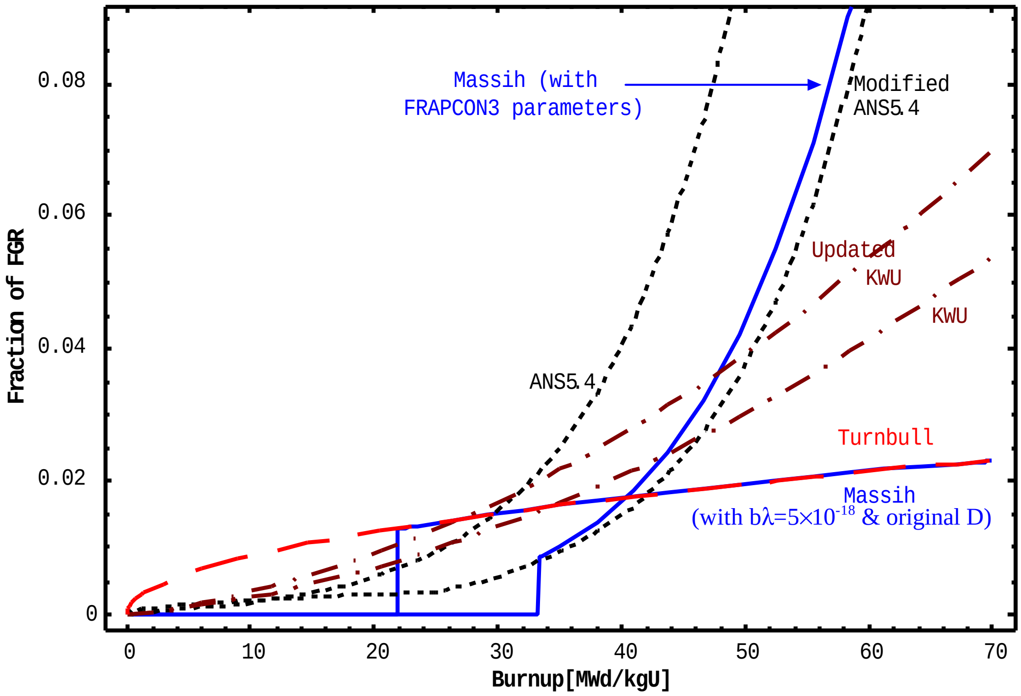


그림 3. Fraction of FGR vs. burnup of each model at 1200^{0}C

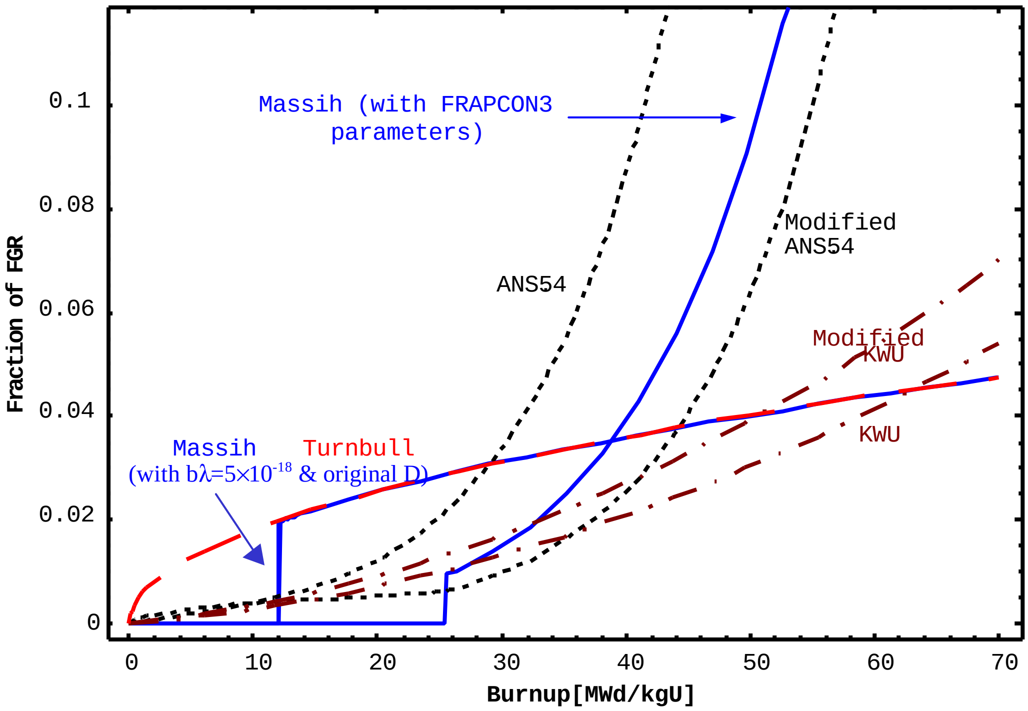


그림 4. Fraction of FGR vs. burnup of each model at 1400^{0}C

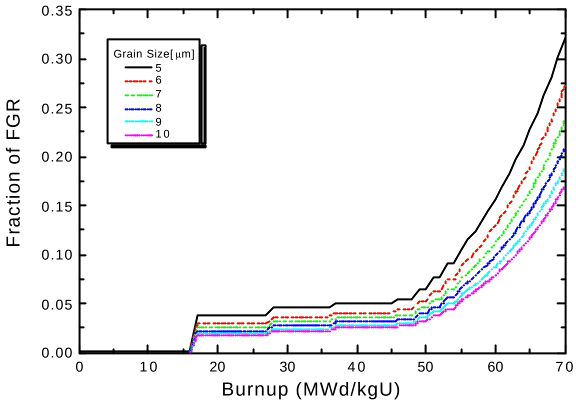


그림 5. Grain size effect of Massih model(FRAPCON3 parameters) at 1200^{0}C

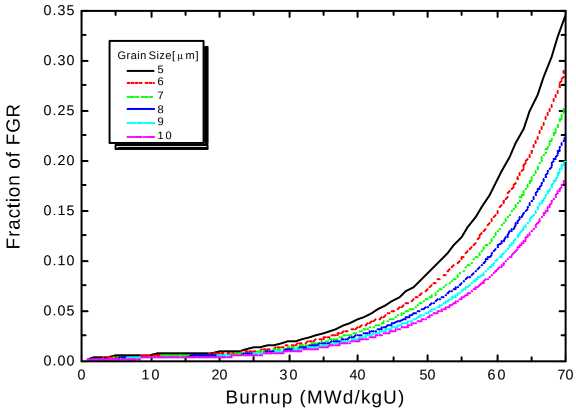


그림 6. Grain size effect of Turnbull model(FRAPCON3 parameters) at 1200^{0}C

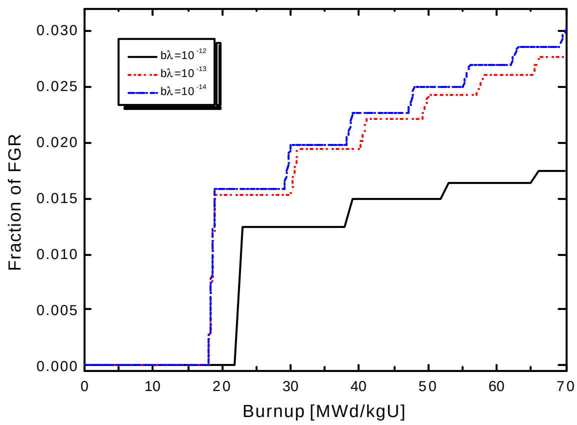


그림 7. Grain size effect of Turnbull model(FRAPCON3 parameters) at 1200^{0}C

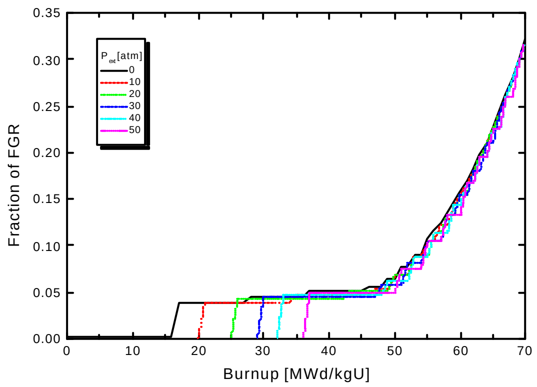
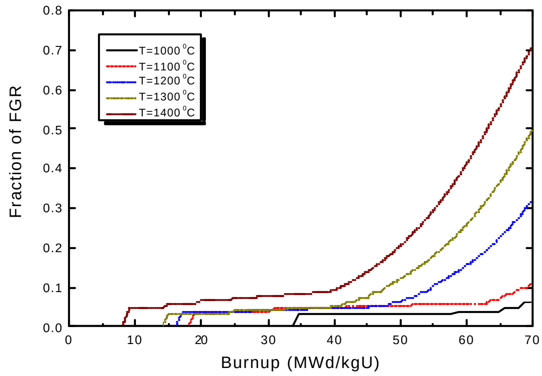


그림 8. Saturated bubble concentration effect of Massih model(FRAPCON3 parameters) at 1200^{0}C

그림 9. Temperature effect of Massih model(FRAPCON3 parameters) at 1200^{0}C



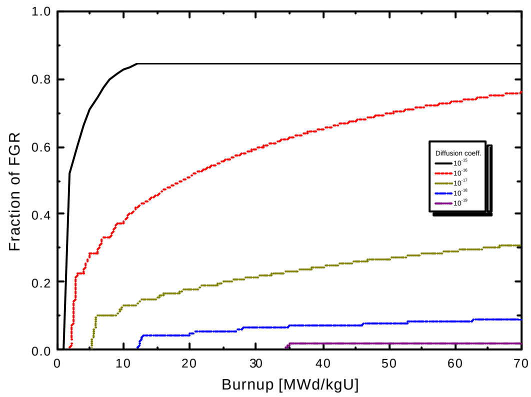
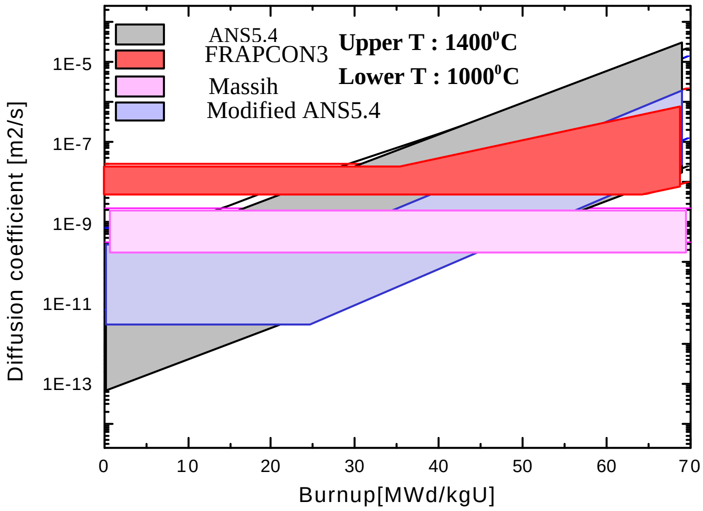
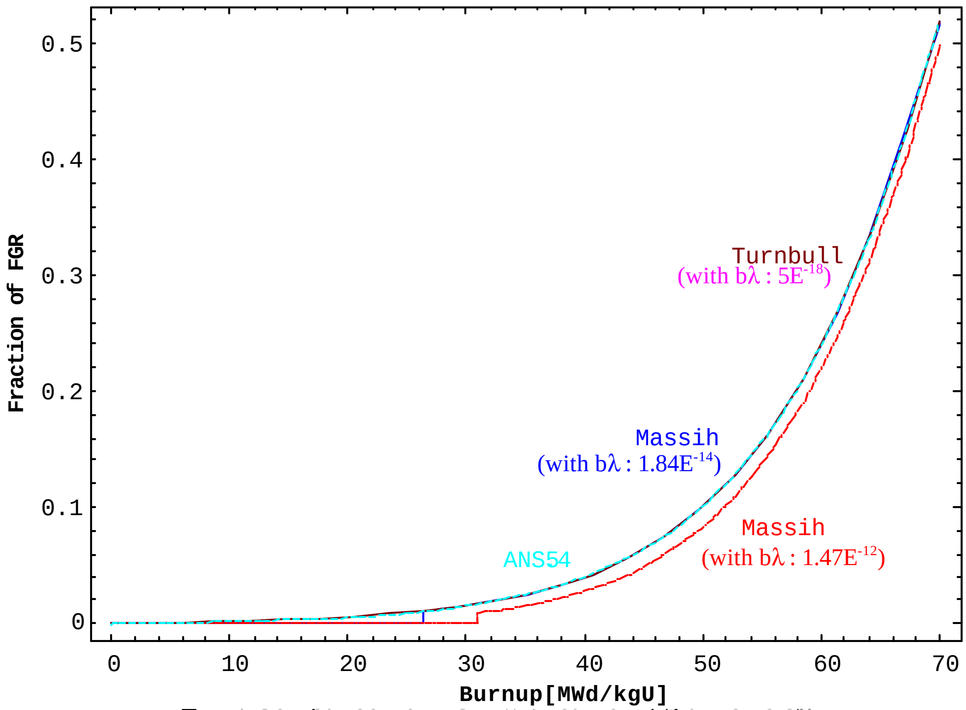


그림 10. Diffusion coefficient effect of Massih model(FRAPCON3 parameters) at 1200^{0}C



ANS5.4
FRAPCON3
Massih
Modified ANS5.4
Upper T : 1400°C
Lower T : 1000°C
Diffusion coefficient [m2/s]
1E-5
1E-7
1E-9
1E-11
1E-13
0
10
20
30
40
50
60
70
Burnup[MWd/kgU]



Fraction of FGR
0.5
0.4
0.3
0.2
0.1
0
Turnbull
(with bλ : 5E-18)
Massih
(with bλ : 1.84E-14)
Massih
(with bλ : 1.47E-12)
ANS54
0
10
20
30
40
50
60
70
Burnup[MWd/kgU]