'2000춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

고연소 핵분열 생성기체 방출량 평가론 분석: Single Stage with GB Saturation 모델 vs. Two Stage 모델

A Study on High Burn-up Fission Gas Release Model: Single Stage with GB Saturation Model vs. Two Stage Model

이동욱, 양용식, 김용수
한양대학교
서울특별시 성동구 행당동 17

이찬복, 방제건, 정연호
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요　　약

고연소 핵연료의 정확한 핵분열 생성물 방출량 평가를 위해 최근 개발되어 크게 주목을 받고 있는 두 모델, two stage **모델과** single stage with grain boundary saturation **모델을 고연소 핵연료 자료**(BR-3 24I6)**를 이용해 분석하였다**. **그 결과** single **및** two stage**모델은 각각 실험값** (21.8%)**와 유사한** 16.7, 19.2%**를 예측하였으며** two stage **모델이 다소 더 정확한 것으로 나타났다**. **연구결과 이러한 차이는 두 모델에서 각기 달리 채택한 확산계수**, **결정립계내 가스원자의 계산절차**, **결정립 크기 등의 인자들에 기인한다는 것이 확인되었다**. Two stage **모델이 좀더 보수적인 확산계수를 사용하고 있을 뿐 아니라 결정립 크기를** 5μm**로 제한하고 있고 또한 그 크기를 토대로** Massih **상수등을 도출하여 사용하고 있어 결정립계내 가스원자 밀도의 계산절차가** single stage **모델과 다르기 때문이다**. **따라서 향후 독자적인 최적 고연소 핵분열 생성물 방출 모델을 개발하기 위해서는 최근 모델들과 방출량에 영향을 미치는 인자들에 대해 좀더 종합적인 검토가 필요하다고 사료된다**. **이 모델들은 모두 동일한 전산환경에서 평가 될 수 있도록** FEMAXI-Ⅳ **코드에 이식되어 평가되었다**.

Abstract

Recent models, two stage model and single stage model with grain boundary saturation, for calculating fission gas release rate in the high burnup fuels are received and estimated by using BR-3 24I6 fuel rod irradiation data. The computational results of the two models are in good agreement with the experimental result (19.2%) of BR-3 24I6 irradiated fuel rod. The estimation of the two stage model is closer to the in-pile data (19.2%) than that of the single stage model(16.7%). This difference stems from the different diffusion coefficients, different approach for the gas atom density calculation within grain boundary, different grain sizes, etc. For the un-biased parametric comparison, these two models are transplanted in the FEMAXI-Ⅳ fuel performance code. This study demonstrate that it is necessary that through review and comparison of the parameters affecting the release rate evaluation must be carried out before the construction of the fuel performance model for high burnup application.

1. 서　　론

핵분열 생성물은 핵연료의 봉내 압력을 상승시키고 기체상 핵분열 생성물들의(Xe, Kr) 낮은 열전도도로 핵연료의 온도를 상승시켜 결국 선출력 제한치를 낮추게 되는등 핵연료의 열적, 기계적 성능에 가장 중요한 현상이다. 모든 핵연료 성능평가 코드들에서 핵분열 생성물 방출량 계산은 방출 모델에 매우 의존적이다. 그리고 이 모델들에 대한 연구가 수십년 동안 진행되어 왔다. 그러나 기존에 개발된 모델들은 발전소 및 실험으로부터 얻어진 측정치와 비교를 통해 타당성을 입증하였으나 각 모델 검증에 사용된 자체 데이터베이스의 범위가 결국 각 모델의 적용범위를 결정하는 한계를 가지고 있다. 뿐만아니라 최근 핵연료는 고연소·장주기 체제로 전환되어 핵분열 생성물 방출이 더욱 심각한 문제로 대두되고 있다. 이에따라 고연소에서 방출되는 핵분열 생성물 방출량을 예측할 수 있는 모델이 더더욱 필요한 시점이다. 따라서 고연소에서의 핵분열 생성물 방출의 역학을 잘 이해하고 이를 바탕으로 핵연료 성능평가 코드내의 모델을 정확히 기술하는 것이 필요하다. 그러므로 본 연구에서는 독자적인 고연소도 모델 개발의 초기 단계 연구로서 주요 원자력 선진국들이 최근 발표한 고연소 모델중 현재 많은 논의가 되고 있고 고연소에서 핵분열 생성물 방출량의 이론적인 접근을 시도한 two stage 모델과 single stage with grain boundary saturation 모델을 이론적으로 비교 분석하였고 실제 고연소도 조사시험자료(BR-3 24i6 fuel rod)를 적용하여 각 모델의 차이를 확인하고 검증하였다.

2. Single and Two-stage Grain Boundary Saturation 모델

Single Stage with Grain Boundary Saturation 모델

FEMAXI-IV 코드에서 사용되고 있는 single stage grain boundary saturation 모델[7]은 기본적으로는 Booth의 확산 방정식[3]에 근거하고 있고 확산방정식은 다음과 같다.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \triangle_r C(r,t) + b'm - g'c + \beta$$

여기에서는 유효확산계수 값을 사용하며 방정식을 풀기 위해 핵분열 생성기체의 resolution에 관계된 항과 trapping에 관계된 항을 고려한다. 또한 최종적인 핵분열 생성기체 방출양을 계산하기에 앞서 결정립 경계면의 성장에 의한 sweeping현상에 의해 추가로 방출되는 핵분열 생성기체 방출양의 증가를 다음과 같은 형태로 고려하고 있다.

$$f_g = \left(\frac{a^{n+1}}{a^n}\right) - 1$$

여기서, a_{n+1} = 성장후 결정립 크기(cm), a_n = 성장전 결정립 크기(cm)이다.
또한 결정립 경계면 버블내에 존재하던 기체가 기지내로 re-dissolution되는 현상을 고려하여 핵분열 생성기체의 생성률(β)에 반영하고 있다. 상기 기술한 미분방정식을 풀기위해 Galerkin에 의해 제안된 유한요소법을 사용하고 있으며 최종식은 다음과 같은 matrix 형태이다.

$$[W_{ij}]\{\Psi_j^{n+1}\} = [Q_i]$$

여기서 Ψ_j^{n+1}을 계산함으로서 결정립내의 핵분열 기체의 양을 구하며 식을 풀기 위한 조건으로 결정립의 표면에서 Ψ_j^{n+1}=0가 사용된다

Two Stage 모델

Two Stage 모델[4]도 역시 일반적인 Booth 모델에서의 확산 방정식에 기반을 두고 있다.

$$\frac{\partial C(r,t)}{\partial t} = D(t)\ \triangle_r C(r,t) + \beta(t)$$

확산 방정식에서 사용된 D값은 resolution rate(b')와 trapping rate(g')를 고려한 유효확산 계수(effective diffusion coefficeint)를 사용하며 β(t)는 핵분열 생성기체의 생성률을 나타낸다.

$$D_{eff} = \frac{b' D}{b' + g'}$$

경계조건 및 초기조건은 다음과 같다

$$C(r,t) = 0$$

$$C(a,t) = (b(t)\lambda N(t)/2D(t))$$

두 번째 조건이 기존의 연구결과와는 달리 결정립계 경계면에서도 일정한 양의 핵분열 생성기체가 존재한다는 것을 의미한다. 또한 경계면 핵분열 생성기체 버블내의 기체농도가 포화 농도 이상이 되어야 핵분열 생성기체가 방출된다고 하여 경계면에서의 포화농도를 고려하고 있다.

수치 해석적인 방법을 통하여 구한 N(τ) (number of gas particles per unit area of grain on the grain boundary)는 다음과 같다.

$$N(\tau) = 2\int_0^{\tau} K(\tau - \tau_0)\left(\beta_e(\tau) - \frac{1}{2}\frac{\partial}{\partial \tau_0}[\ h_1(\tau_0)N(\tau_0)]\right)d\tau_0$$

여기서

$$K_2(\tau) = \frac{1}{4\pi a^2}\left(\frac{4\pi a^3}{3} - K(\tau)\right)\quad \tau = \int_0^{\tau} D(\tau_0)d\tau_0,\ K(\tau) = \frac{8a^3}{\pi}\sum_{n=1}^{\infty}\frac{e^{-n^2\pi^2\tau/a^2}}{n^2}$$ 이다

따라서 연료의 단위부피당 방출된 핵분열 생성기체의 양, F_R, 은 다음과 같다.

$$F_R = fG_s$$

여기서,

G_s : 포화시 결정립 경계면내의 기체밀도

f : 핵분열 생성기체의 방출율

이 모델은 NRC의 감사계산용으로 개발된 FRAPCON-III 코드에서 채택되고 있는 모델이다.

BR-3 24I6 연료봉 고연소 조사실험[5]

DOE 후원으로 벨기에에 위치한 BR-3 원자로에서 WH사에서 제작된 PWR(15x15) 형태의 연료봉 5개를 고연소도에서의 핵연료봉 건전성 입증 및 폐기물 양을 줄일 목적으로 1974 1980에 걸쳐 3주기동안 고연소도 조사실험을 수행하였다. 방출당시 봉 평균연소도는 61GWd/MTU 이었고 국부적으로 70GWd/MTU 까지 달성되었다. 또한 조사초기 출력은 15 16kW/ft 이었고 세 번째 주기에는 10 12 kW/ft 정도로 감소되었다. 연료봉 평균출력 프로파일은 그림1에 나타난 바와 같고 BOL에서 축방향 출력 프로파일은 코싸인 분

포를 가지고 있다가 조사시간에 따라 평평한 출력을 보이고 있다.(그림 2) 실험결과 0.218의 핵분열 생성물 방출비를 보였다. 좀더 자세한 조사전 특성과 조사조건은 각각 표 1과 참고문헌 6에 나타나 있다. FEMAXI-IV(Ver. 2)에서의 모사를 위해 54 time steps으로 적용하였고 위 실험에서 사용한 모든 조건을 동일하게 입력하였다.

3. 결과 및 논의

최근 핵연료의 장주기·고연소 추세에 따라 고연소도에서 핵분열 생성물 방출기구에 대한 철저한 이해와 이에 따른 정확한 독자모델 개발의 필요성이 대두되고 있는 시점에서 본 연구에서는 최근 발표된 two stage 모델과 single stage with grain boundary saturation 모델을 이론적으로 검토하고 실제 고연소 핵연료 조사시험 자료(BR-3 24I6)와 일본에서 개발된 FEMAXI-IV 전산코드[6]에 two-stage 모델을 이식하여 동일한 조건으로 비교/검증 하였다. 그 결과 그림 3에 나타나 있듯이 약 56,500 MWd/MTU 연소도에서 핵분열 생성기체 방출비는 two stage모델이 0.235(equal radial ring volume인 경우), 0.192(equal radial ring size인 경우) 그리고 유한요소법이 적용되어 있는 single stage 모델이 0.167로 평가하였다. 실험값인 0.218에 비해 two stage 모델이 좀더 근사하게 평가하였고 single stage 모델은 다소 저평가하였다. 이러한 차이는 핵분열 생성물 방출에 결정적인 영향을 미치는 확산계수를 서로 다르게 고려하기 때문이다. Single stage 모델은 Turnbull의 연구결과[7]인 확산계수를 사용하고 있고 two stage 모델은 조사시험 데이터를 바탕으로 하여 고연소도, power ramping 등을 고려한 NRC 보정인자를 반영하였기 때문에 실험값에 근접하게 예측하고 있는 것으로 판단된다. 실제 두 모델에서 사용된 확산계수는 그림 4에 나타나 있듯이 연소도가 약 50,000MWd/MTU를 넘어서면 노내 조사온도 범위내에서 two stage 모델이 single stage 모델보다 높은 확산계수를 적용하고 있다. 그리고 두 모델 평가 차이에 영향을 미치는 것으로 판단되는 인자들은 다음과 같다.

결정립계내 가스 원자 수

Single stage 모델은 전 timestep과 이번 timestep에서 결정립에 존재하고 있는 가스 원자수의 차이가 결정립계로 빠져나가고 결정립계 가스원자 포화농도 이상이 되면 그 차이 만큼이 방출되는 것으로 고려하고 있는 반면 two stage 모델은 결정립과 결정립의 크기에 따라 결정된 Massih 상수를 바탕으로 결정립계내에 존재하는 가스 원자를 고려하여 결정립계내 가스원자 포화농도 이상이 되면 전부 방출되는 것으로 고려하고 있다. 실제 코드내에서 계산되는 값을 분석해 보면 two stage 모델의 경우, 약 30,000MWd/MTU 연소도 이상에서 결정립계내 가스원자가 포화농도를 초과해 방출이 일어나고 있고, single stage 모델의 경우, 약 10,000MWd/MTU 연소도에서부터 포화농도 이상이 되어 지속적으로 방출이 일어나고 있다. 이는 상기에서 서술한 두 모델간의 차이에 기인한 것으로 보인다.

결정립 크기

두 모델의 또 하나의 큰 차이점인 결정립 크기는 single stage 모델에서는 그 제한을 두지 않고 있지만 two stage 모델에서는 그 크기를 5μm로 제한하고 있을 뿐아니라 모델내에서 사용되고 있는 Massih 상수가 이 크기를 적용하여 도출되었다. 결정립 크기에 따른 핵분열 생성물 방출량은 그림 5에 나타나 있다. 결정립 크기가 커질수록 거의 선형적으로 핵분열 생성물 방출량이 증가하는 것을 볼 수 있다. 따라서 two stage 모델의 경

우 결정립 크기에 대한 좀더 현실적인 반영이 필요하다고 사료된다.

Ring 부피

Two-stage 모델을 적용하는데 있어 반경반향의 ring 두께를 등간격으로 나누었을 경우와 ring의 부피를 등부피로 나누었을 경우 핵분열 생성물 방출비는 그림 3에서 볼 수 있듯이 각각 0.192, 0.235(24i6 rod)로 예측하였다. 등부피로 선정했을 때 온도가 높은 핵연료 중심 영역이 상대적으로 많아져 방출량이 높게 나타난 것으로 판단된다. 이처럼 전산코드의 계산 scheme에 의해서도 핵분열 생성물 방출비는 차이가 날 수 있기 때문에 실제 모델을 적용함에 있어 신중한 고려가 필요하다는 것을 확인하였다.

4. 결론

결론적으로 핵분열 생성기체 방출의 물리적인 현상을 이론적으로 자세히 기술한 최근 논의되는 모델들도 실제 방출량을 정확히 예측하지 못하고 각기 장단점이 존재하고 있다는 것을 본 연구를 통해 확인하였다. 이는 이론적인 모델을 기술하는데 있어 많은 가정과 정량적으로 표현하기 힘든 변수들을 사용하고 있고 모든 현상을 고려하기가 불가능하기 때문인 것으로 생각된다. 따라서 향후 핵분열 생성기체 방출량에 영향을 미치는 인자들, 특히 상기에서 기술한 확산계수, 결정립 크기, sweeping, trapping, resolution, re-dissolution 등의 현상에 대한 철저한 검토를 통하여 최적의 모델을 기술하고 다양한 고연소 핵연료 자료를 통해 검증해야 할 것으로 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] 신안동, 국동학, 김용수, "최적 모델 개발을 위한 기존 핵분열 생성물 방출 모델 비교 분석", *'96 춘계학술발표대회, 한국원자력학회*, 1996

[3] A.H. Booth, A Method of Calculating Fission Gas Diffusion from UO2 Fuel, *CRDC-721* (1957)

[4] K.Forsberg and A.R. Massih, Diffusion Theory of Fission Gas Migration in Irradiation Nuclear Fuel UO2, *J. Nucl. Mater.* **135** (1985) 140

[5] 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

[6] M. Suzuki and H. Saitou, "Light Water Reactor Fuel Analysis Code FEMAXI-IV (Ver.2) -Detailed Strusture and User's Manual", *JAERI-Data/Code* 97-043

[7] 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

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

Fuel Rod	
Overall length(in.)	44.714
Diameter(in.)	0.4220
Fuel stack height(in.)	38.40
Nominal plenum chamber length(in.)	4.0145
Number of pellets per rod	64
Fuel/clad diametral gaps(mils)	7.5
Fill gas composition	He
Fill gas pressure(atm)	13.61
Cladding	
Material	Zircaloy-4
Diameter outside(in.)	0.4220
Diameter inside(in.)	0.3734
Clad wall thickness(in.)	0.0243
Fuel	
Material	UO2
Enrichment(%)	6.42
Pellet sintered density(%TD)	95.007
Pellet diameter(in.)	0.3659
Pellet length	0.6
Pellet geometry	Dished, both ends
Dish radius(in.)	0.66
Dish depth(in.)	0.0135
Grain size(μm)	10.9

표 1 General Design Specifications for BR-3 24I6 Rod

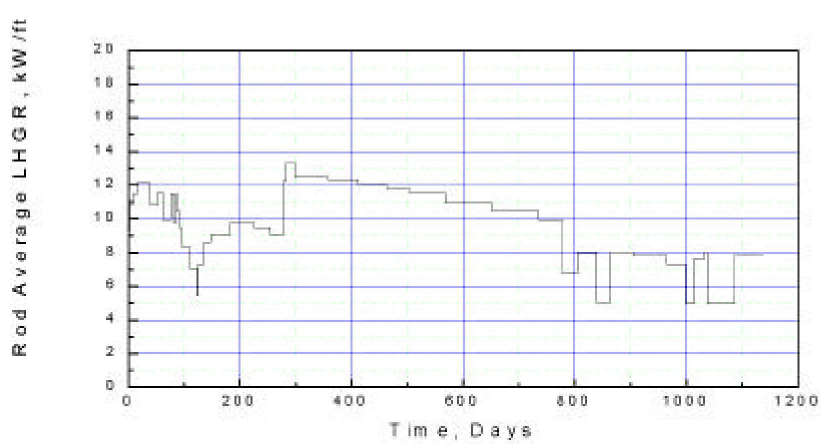

그림 1 Rod-Average Power Versus Operating Time for Rod 24-I-6

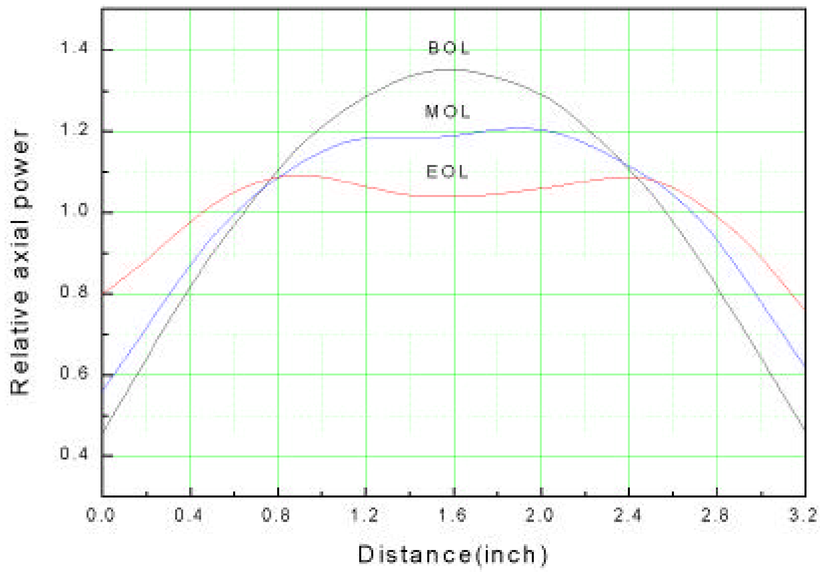

그림 2 Relative Axial Power Versus Operating Time

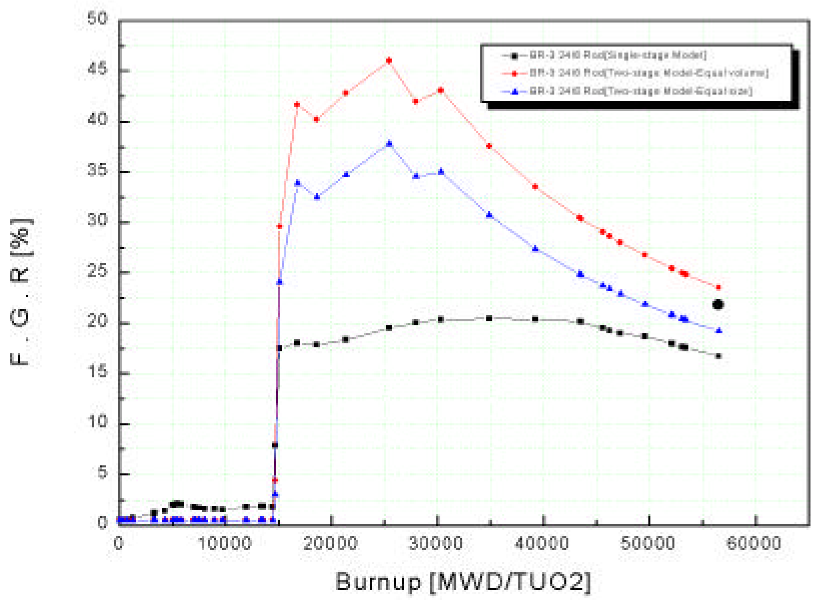

그림 3 Fission Gas Release with Rod Average Burnup

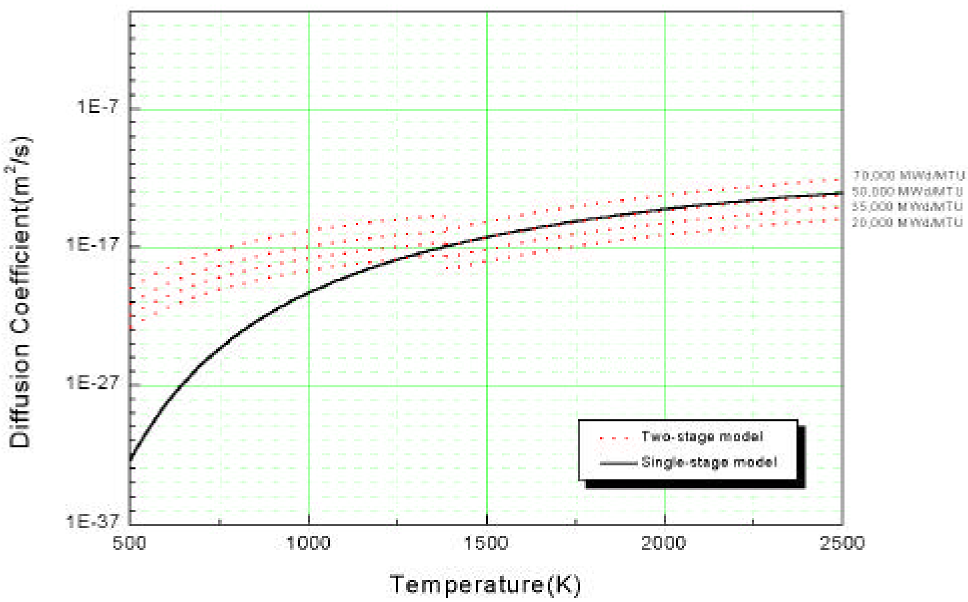

그림 4 Diffusion Coefficients with Temperature

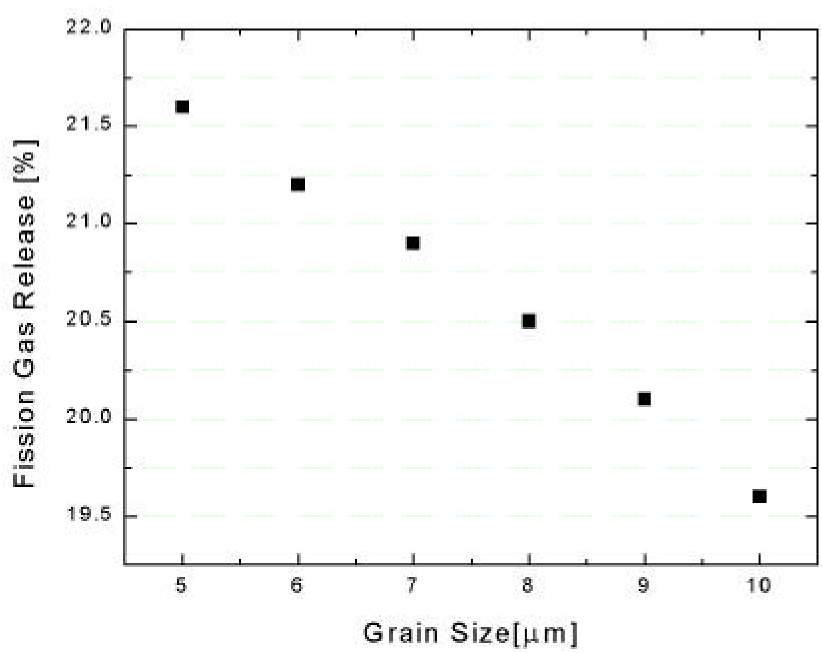

그림 5 Fission gas release with grain size