

고연소 핵연료에서 핵분열 생성기체 방출 예측:
Two-stage Booth 모델 대 조사시험 자료

Prediction of Fission Gas Release in High Burn-up Fuels:
Two-Stage Booth Model vs Irradiation Data

이동욱, 양용식, 김용수

한양대학교
서울특별시 성동구 행당동 17

이찬복, 방제건, 정연호

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

고연소 핵연료에서 핵분열 생성물 방출량을 계산하는 최근 모델(Booth 확산 모델, two-stage Booth 확산 모델, more mechanistic two-stage Booth 확산 모델)을 고연소 핵연료 자료(BR-3 2416)와 FRAPCON-III, FEMAXI-IV 코드를 이용하여 검증하였다. 그 결과 온도와 연소도에 따라 더 민감한 반응을 보이는 Booth(ANS 5.4) 모델은 최종 핵분열 생성물 방출량을 26.9%로 실험값(21.8%) 보다 높게 예측하여 보수적이었고 two-stage Booth 모델은 20.6%로 실험값에 근접하게, 그리고 more mechanistic two-stage Booth 모델은 17.6%로 실험값보다 약 19%정도 저평가하였다. 이는 모델 자체 확산계수가 two-stage Booth 모델보다 more mechanistic two-stage Booth 모델이 더 크지만 실제 계산과정에 적용된 유효확산계수는 최근 완료된 고연소 조사시험 자료에 근거한 연소도 향상인자(계산과정중 약 40,000MWd/MTU 연소도 이상에서 최대 20,000배까지 고려)를 고려한 two-stage Booth 모델이 more mechanistic two-stage Booth 모델보다 약 40,000MWd/MTU 연소도 이상에서 더 큰 값으로 적용되었기 때문인 것으로 판단된다. 향후 독자적인 최적 고연소 핵분열 생성물 방출 모델을 개발하기 위해서는 국제적으로 많이 논의되고 있는 two-stage Booth 모델과 방출량에 영향을 미치는 인자들에 대해서 좀더 면밀한 검토가 필요하다고 사료된다.

Abstract

Using by BR-3 2416 irradiation data and FRAPCON-III, FEMAXI-IV code, recent model(two-stage Booth model, more mechanistic two-stage Booth model and Booth(ANS5.4) model), calculating fission gas release rate at high burnup conditions, are compared and estimated. In results, fission gas release fraction(26.9%) by Booth(ANS5.4) model, having sensitivity for temperature and burnup, is over-estimated than BR3 2416 in-pile test FGR results(21.8%). Two-stage Booth model(20.6%) has good estimation and more mechanistic two-stage model(17.6%) under-estimates the release fraction about 19% respectively. It is

believed that two-stage model calculates fission gas release fraction with effective diffusion coefficient considered burnup enhancement factor, which is applied to maximum 20,000 times above 40,000MWd/MTU burnup in calculating process and so highly estimate the fission gas release fraction than that of more mechanistic two-stage Booth model. In order to describe optimum FGR model considered high burnup conditions, it is necessary that reviews more precisely about two-stage Booth model.

I 서 론

핵분열 생성물은 핵연료의 붕내 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 기존의 모델들은 고연소에서 방출되는 핵분열 생성물 방출량과 잘 일치하지 않는다. 따라서 고연소에서 핵분열 생성물 방출의 역학을 잘 이해하고 이를 바탕으로 핵연료 성능평가 코드내의 모델을 정확히 기술하는 것이 요구되고 있다. 또한 국내에서도 최근 핵연료의 장주기 고연소도 추세에 따라 고연소도에서 핵분열 생성물 방출에 대한 이해에 따른 정확한 모델을 개발할 필요성이 대두되고 있다. 따라서 본 연구에서는 독자적인 고연소도 모델 개발의 초기 단계 연구로서 연소도에 따른 확산 계수 증가 영향을 고려하는 Booth 모델과 고연소에서 핵분열 생성물 방출량의 이론적인 접근을 시도한 two-stage Booth 모델, 그리고 more mechanistic Booth 모델을 실제 고연소도 조사시험 자료를 적용하여 각 모델의 차이를 확인하고 검증하였다.

II. Two-stage Booth 모델과 고연소도 조사시험 (BR-3 24I6)

Booth 확산 모델(ANS 5.4 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 기초로하여 정상상태 핵분열 생성물 방출비를 계산한다. ANS 5.4 모델의 인자는 local temperature, local burnup, time interval 들을 사용하고 있다. 안정한 핵분열 핵종의 경우 Booth(ANS 5.4) 모델은 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$f = 4\sqrt{\frac{\tau}{\pi}} - \frac{3}{2}\tau \quad \text{when } \pi^2\tau > 1$$

$$f = 1 - \frac{a^2}{15\tau} + \frac{6}{\tau} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\exp(-n^2 \pi^2 \tau)}{n^2 \pi^4} \quad \text{when } \pi^2\tau > 1$$

$$\text{여기서, } \tau = D \Delta t \quad , D = \left(\frac{D_0}{a^2} \right) \exp(-Q/RT) \times 100^{\text{Bu}/2000}$$

$$\frac{D_0}{a^2} = 0.61 \text{ sec}^{-1} \quad , Q = 72,300 \text{ cal/mole}$$

위 모델에서 사용된 $\frac{D_0}{a^2}$, 활성화 에너지 (Q) 값은 400~60,000 MWd/MTU 연소도 영역의 경수로와 고속증식로 실험결과에 의한 값이다.

실제 이 모델은 매우 단순함에도 불구하고 현재까지도 NRC가 고연소 핵연료 성능 감사 계산용으로 채택하고 있을 정도로 활용성이 높은 모델이다.

Two-stage Booth 확산 모델(FRAPCON-III 모델)

Two-Stage Booth 모델은 일반적인 Booth 모델에서의 확산 방정식에 기반을 두고 있다.

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

확산 방정식에서 사용된 D값은 resolution rate(b')와 trapping rate(g')를 고려한 유효 확산 계수(effective diffusion coefficient)를 사용하며 $\beta(t)$ 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 Booth 모델과 two-stage Booth 모델의 차이점중의 하나로서 기존의 연구결과와는 달리 결정립계 경계면에서도 일정한 양의 핵분열 생성기체가 존재한다는 것을 의미한다. 또한 Booth는 핵분열 생성기체가 결정립계의 경계면에 도달하는 즉시 방출된다는 가정을 하였지만 two-stage Booth는 경계면 핵분열 생성기체 버블내의 기체농도가 포화 농도 이상이 되어야 한다고 하였다.

수치 해석적인 방법을 통하여 구한 $N(\tau)$ (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

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

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

$$F_R = fG_e$$

여기서,

G_e : 포화시 결정립 경계면내의 기체밀도

f : 핵분열 생성기체의 방출율

이 모델은 NRC의 감사계산용으로 개발된 FRAPCON-III에서 채택되고 있는 모델이다.

More mechanistic two-stage Booth 확산 모델(FEMAXI-IV 모델)

FEMAXI-IV에서 사용되고 있는 more mechanistic two-stage Booth 확산 모델도 기본적으로는 Booth의 확산 방정식에 근거하고 있고 확산방정식은 다음과 같다.

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

여기서도 역시 유효확산계수 값을 사용하며 방정식을 풀기 위해 핵분열 생성기체의

resolution에 관계된 항과 trapping에 관계된 항을 고려한다. 그러나 two-stage Booth 모델과는 다르게 최종적인 핵분열 생성기체 방출량을 계산하기에 앞서 결정립 경계면의 성장에 의한 sweeping현상에 의해 추가로 방출되는 핵분열 생성기체 방출량의 증가를 다음과 같은 형태로 고려하고 있다.

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

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.

BR-3 2416 연료봉 고연소 조사실험

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 평균 출력 프로파일은 그림1에 나타난 바와 같고 BOL에서 축방향 출력 프로파일은 코싸인 분포를 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. FRAPCON-III와 FEMAXI-IV(Ver. 2)에서의 모사를 위해 54 time steps으로 적용하였고 위 실험에서 사용한 모든 조건을 동일하게 입력하였다.

III. 결과 및 논의

최근 핵연료의 장주기 고연소 추세에 따라 고연소도에서 핵분열 생성물 방출에 대한 철저한 이해와 이에 따른 정확한 독자모델 개발의 필요성이 대두되고 있는 시점에서 본 연구에서는 기존의 Booth 확산 모델과 최근 발표된 two-stage Booth 확산 모델, 그리고 more mechanistic two-stage Booth 확산 모델을 이론적으로 검토하고 고연소 핵연료(BR-3 2416)를 통하여 비교/검증 하였다. 그 결과 그림 4에서 보듯이 핵분열 생성기체 방출비는 각각 0.269, 0.206, 0.176으로 평가하였다. 실험값인 0.218에 비해 Booth 확산 모델이 가장 보수적으로 평가하였고 two-stage Booth 모델이 비교적 잘 일치하였지만 more mechanistic Booth 모델은 약 19%정도 저평가 하는 것으로 나타났다. 이러한 차이를 설명하기 위해 핵분열 생성물 방출량에 결정적인 영향을 미치는 온도와 확산상수를 살펴보았다.

그림 3에 나타나 있듯이 모델 자체에 연소도 향상 인자를 고려하고 있는 Booth 모델은 연소도가 증가함에 따라 확산계수(D')가 매우 크게 증가하는 것을 볼 수 있고 이 증가되는 확산계수는 two-stage Booth 모델들에 비해 상당히 큰 값을 나타내고 있다. 그 이유는 two-stage Booth 모델들이 실제 핵분열 기체가 기지내에서 경계면으로 확산하면서 기체버블내로 흡수되는 trapping과 fission recoil에 인해 다시 버블에서 기지로 삼입되는 resolution을 고려하고 경계면까지 확산해 온 기체가 경계면에서 일정한 핵분열 기체가 축적되고 포화상태가 되면 방출되는 것을 고려하고 있기 때문이다. 또한 FEMAXI-IV 모델은 결정립 성장으로 인해 발생하는 핵분열 기체의 sweeping과 입계면의 기체가 다

시 결정내로 흡수되는 re-dissolution 등의 현상을 고려하고 two-stage Booth 모델보다 큰 경험상수 값을 사용하고 있어 온도가 올라갈수록 two-stage Booth 모델보다 더 높게 나타나고 있다. 평가결과 일반적으로 핵분열 생성기체 방출량은 확산계수에 비례하므로 more mechanistic two-stage Booth 모델이 two-stage Booth 모델보다 높게 나타날 것이라는 생각과 달리 반대의 현상이 일어났다.

그림 5에서 볼 수 있듯이 전산코드(FRAPCON-III, FEMAXI-IV)에서 평가한 핵연료 중심온도 분포는 같은 계산과정, 위치(node 4)에서 핵분열 생성물 방출비를 보수적으로 예측한 Booth(ANS5.4) 모델을 적용하였을 때가 two-stage Booth 모델을 적용하였을 경우보다 약 30,000MWd/MTU 이후부터 조금씩 높게 모사하고 있고 계산과정은 약간 다르지만 more mechanistic two-stage Booth 모델을 적용하여 평가한 경우는 상당히 높은 온도를 평가하고 있어, 평가된 온도 분포는 각 모델의 확산계수와 유사한 경향을 나타내고 있어 앞에서 기술한 현상에 영향을 미치지 않는 것으로 판단된다.

그러나 실제 계산과정에 사용된 유효확산계수를 비교한 결과, Booth 모델의 경우, 그림 6에서 나타나 있듯이 실제 유효확산계수가 two-stage Booth 모델들보다 월등히 큰 값으로 적용되는데 이는 연소도 향상인자를 $100^{Bu/20000}$ 으로 고려하기 때문에 고연소로 갈수록 큰 값으로 적용되었기 때문이다. Two-stage Booth 모델들의 경우, 고연소 영역에서 two-stage Booth 모델의 유효확산계수가 FEMAXI-IV 모델의 유효확산계수에 비해 큰 것으로 나타났다.(그림 7) 이는 계산과정에서 최근 완료된 고연소도 조사시험 데이터에 의해 보정된 two-stage Booth 모델(FRAPCON-III)의 유효 확산 계수가 연소도 향상 인자(burnup enhancement factor)를 약 40,000 MWd/MTU 연소도 이상에서 최대 20,000 배까지 증가를 고려하고 있기 때문이다. 따라서 two-stage Booth 모델이 더 많은 양의 핵분열 생성 기체방출을 평가하였다.

결론적으로 핵분열 생성기체 방출량은 물리적인 현상을 이론적으로 자세히 기술한 모델도 이론적으로 단순화하면서 경험적인 값을 사용한 모델들에 비해 실제 방출량을 정확히 예측하지 못할 수 있다는 것을 본 연구를 통해 검증하였다. 이는 이론적인 모델을 기술하는데 있어 많은 가정과 정량적으로 표현하기 힘든 변수들을 사용하고 있고 모든 현상을 고려하기가 불가능하기 때문인 것으로 생각된다. 따라서 향후 연소도 향상 인자 등과 같이 핵분열 생성기체 방출량에 영향을 미치는 항들에 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] D.R. Olander, Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements, *TID-26711-P1*, Technical Information Center U. S. Department of Energy
- [3] 신안동, 국동학, 김용수, "최적 모델 개발을 위한 기존 핵분열 생성물 방출 모델 비교 분석", '96 춘계학술포럼대회, 한국원자력학회, 1996
- [4] A.H. Booth, A Method of Calculating Fission Gas Diffusion from UO₂ Fuel, *CRDC-721(1957)*
- [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] M. Suzuki and H. Saitou, "Light Water Reactor Fuel Analysis Code FEMAXI-IV (Ver.2) -Detailed Structure and User's Manual", *JAERI-Data/Code 97-043*

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	UO ₂
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(μ m)	10.9

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

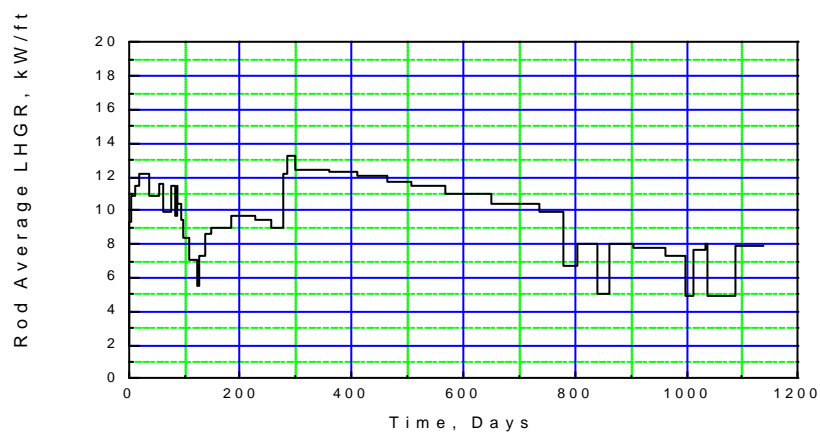


그림 1 Rod-Average Power Versus Operating Time for Rod 24-I-6

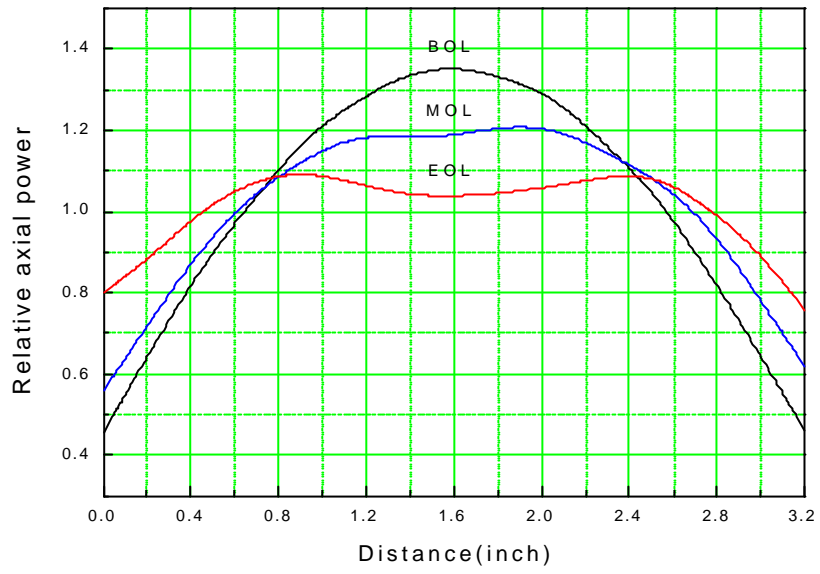


그림 2 Relative Axial Power Versus Operating Time

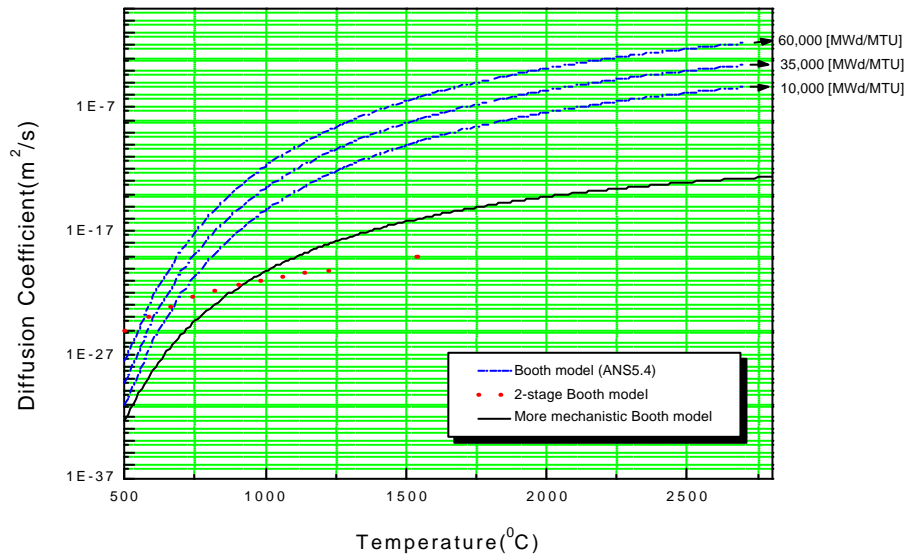


그림 3 Diffusion Coefficient with Temperature

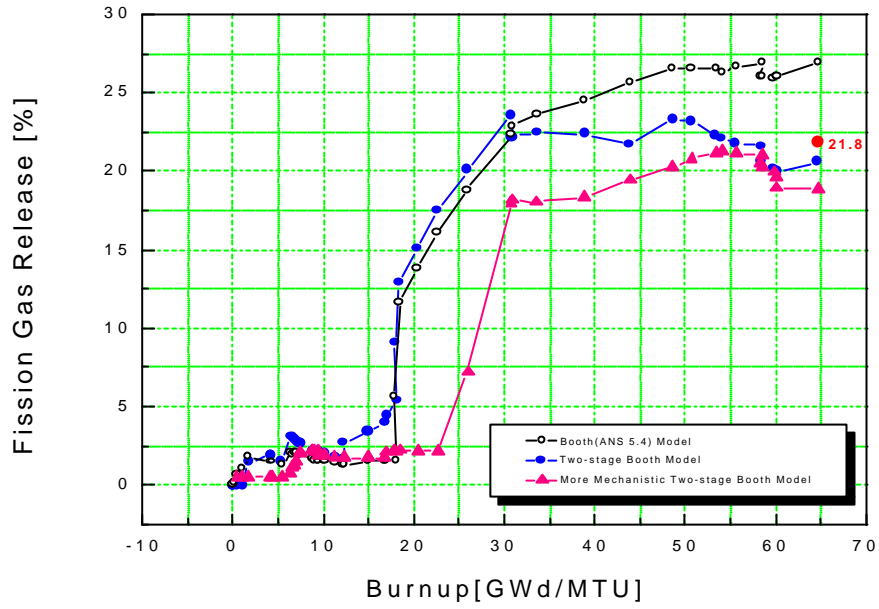


그림 4 Fission Gas Release with Rod Average Burnup

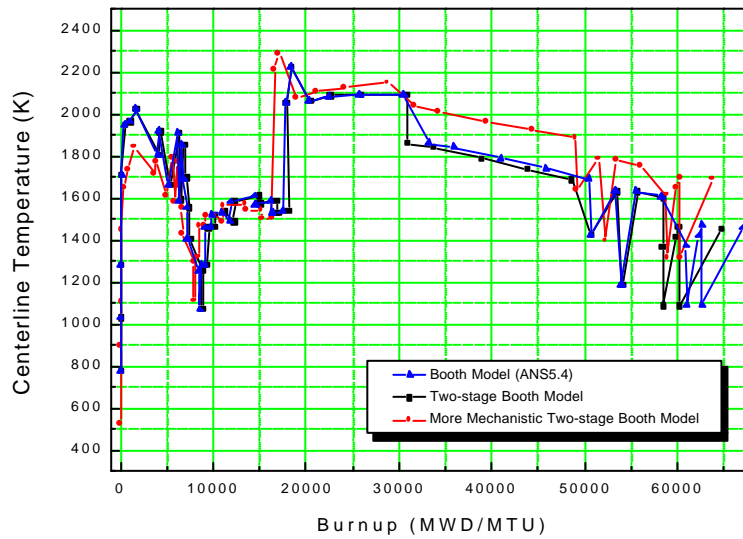


그림 5 Centerline Temperature with Rod Average Burnup

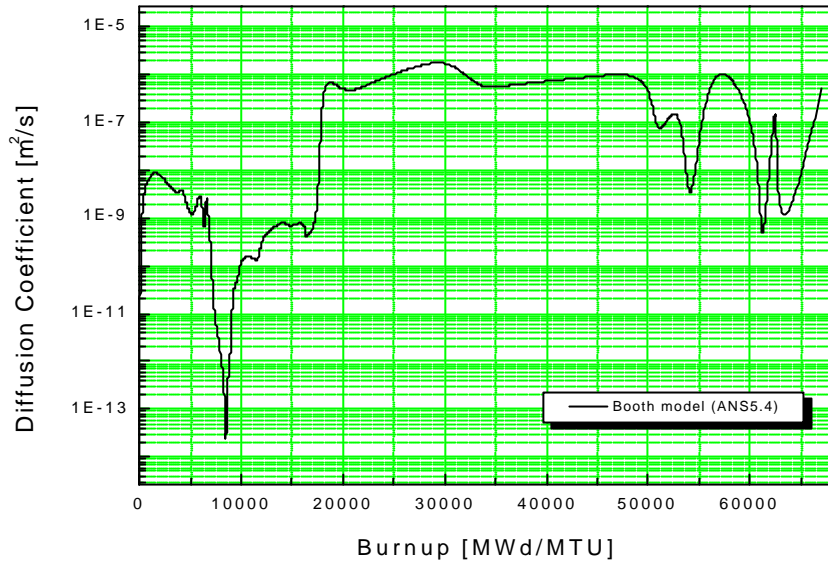


그림 6 Booth Model's Effective Diffusion Coefficient with Burnup

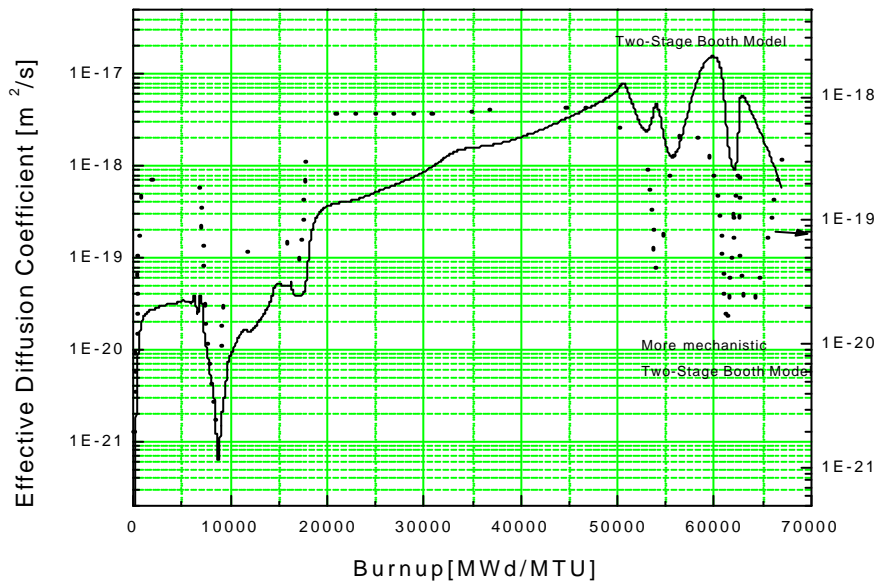


그림 7 Effective Diffusion Coefficient with Rod Average Burnup