

'98 춘계학술발표회 논문집

한국원자력학회

## 중대사고시 Zr산화 반응모델의 비교분석

최 영, 조성원, 김시달, 김동하, 김희동

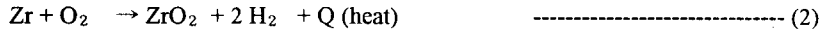
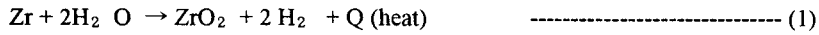
한국원자력연구소

### 요 약

핵연료 피복관의 산화반응 현상은 중대사고시 원자로와 격납건물의 건전성을 위협하는 중요한 원인중의 하나이다. 본 논문에서는 MELCOR에서 사용중인 Urbanic-Heidrich 상관식과 SCDAP/RELAP5/MOD3.1에서 사용중인 MATPRO-EG&G 상관식을 사용하여 산화 반응 모델이 노심손상에 미치는 영향을 울진원전3,4호기를 대상으로 MELCOR의 입력변수의 변화에 따른 민감도를 분석하였다. 분석결과, Urbanic-Heidrich상관식이 MATPRO-EG&G 상관식에 비해 핵연료 용융시작을 약 394초, 원자로 노심 하부에서의 용융물 재배치 (relocation) 시작을 약 434초 가량 빨리 초래하여 사고진행에는 큰영향이 없음을 나타내고 있으나 노심하부 파손시점까지 발생한 수소량은 Urbanic-Heidrich상관식이 MATPRO-EG&G 상관식에 비해 약 1.4배정도 더 많이 발생시켜 격납건물 건전성에 대한 영향이 매우 크므로 보다 자세한 모델검토가 요구된다.

### 1. 서론

중대사고가 발생하여 노심이 노출될 경우 핵연료 피복재인 지르카로이는 수증기와 산화반응을 일으켜 많은 수소를 발생시킨다. 동시에 이 반응은 매우 많은 열을 발생시키는 발열반응이므로 사고진행을 촉진시켜 핵연료 및 원자로파손에 크게 영향을 미친다. 또한 노심이 용융되는 중대사고시 발생하는 다량의 수소는 기폭하여 폭발반응을 일으킴으로써 격납건물에 직접적인 하중을 가하여 격납건물의 건전성을 위협하게 되며 안전관련 기기에 손상을 유발시킬 수 있는 것으로 알려져 있다. 실제로 TMI-2사고에서 핵연료 피복관/노심용융물과 수증기와의 반응으로 다량의 수소가 발생하여 격납용기로 방출되었다. 그러므로 노심손상을 동반하는 중대사고시 수소 생성 공급원으로서 핵연료 피복관의 산화반응은 중요한 현상으로 대두되어 왔다. 이 Zr산화반응은 다음과 같은 발열반응으로 표시된다. [1]



고온에서 수증기와 Zr의 반응현상이 매우 신속하므로 특히 중대사고시에 첫째식이 더욱 중요한 반응이다. 그러므로 본 논문에서는 수증기와 Zr산화반응을 분석하고자 한다.

## 2. 산화반응모델

초기의 지르카로이 피복관은 고온에서 안정된 순수  $\beta$ -Zr으로만 구성되어 있다. 그러나 수증기와 고온의 피복관이 반응함에 따라서 피복관내에 Zr은 산소농도에 따라서 3가지 종류로 구분된다. 즉 피복관 외벽부터 산소농도가 높은 순서대로  $\text{ZrO}_2$ ,  $\alpha$ -Zr, 그리고  $\beta$ -Zr로 구성된다. 이와 같이 순수Zr가  $\text{ZrO}_2$ ,  $\alpha$ -Zr으로 전환되는 반응을 산화반응이라 하며 이와 같은 산화반응은 다음과 같이 parabolic 형태를 따른다.

$$dW^2 / dt = K(T) \quad \text{----- (3)}$$

W : 단위표면 당 산화물의 질량 [ Kg/m<sup>2</sup> ]

K(T) : 반응계수 - A exp (-B/T)

A,B : 상수값

T : 산화층의 온도 [ ° K]

윗식에서 보듯이 산화 반응층의 성장은 시간 제곱근에 비례한다. 이 산화반응은 산화물을 통과하는 음이온 확산에 의해서 지배된다. 산화반응은 거의 유사한 형태를 갖는 상관식으로 표현할 수 있으며, 이 상관식은 온도에 의존하는 상수에 의해서 결정되는데, 이러한 상수는 여러 실험 데이터로부터 도출할 수 있다. 수증기내의 대표적인 산화반응관련 산화 반응 상관식은 다음과 같다.

### Urbanic-Heidrich 상관식 [2]

$$K(T) = 29.6 \exp (-16820.0/T) < 1853 \text{ }^\circ\text{K} \quad \text{----- (4)}$$

$$K(T) = 87.9 \exp (-16610.0/T) \geq 1853 \text{ }^\circ\text{K} \quad \text{----- (5)}$$

### MATPRO-EG&G 상관식 [3]

$$K(T) = 33.6 \exp (-20060.0/T) < 1853 \text{ }^\circ\text{K} \quad \text{----- (6)}$$

$$K(T) = 10.852 \exp (-16610.0/T) \geq 1853 \text{ }^\circ\text{K} \quad \text{----- (7)}$$

### 3. 각 모델의 비교분석

MELCOR의 산화반응모델은 반응계수  $K(T)$ 에 사용되는 상수 A, B와 전이온도를 사용자가 입력할 수 있도록 되어 있고, 위에서 보듯이 각 모델은 전이온도에 따라 2개의 상관식으로 나타낼 수 있으므로 분석에서는 울진원전3,4호기를 대상으로 MELCOR의 입력변수를 변화시켜 각 산화반응 상관식의 영향을 분석하였다. 분석결과 표1에서 보듯이 노심용융시점을 비교할 때, Urbanic-Heidrich 상관식이 MATPRO-EG&G 상관식보다 394초 빠르게 나타나고 또한 노심하부파손 역시 Urbanic-Heidrich 상관식이 435초 빠르다. 수소생성량을 비교해볼 때 노심손상초기에는 별로 차이가 없지만, 그림1에서 보듯이 노심하부 파손시에는 Urbanic-Heidrich 상관식이 MATPRO-EG&G 상관식보다 1.4배정도 더 많이 발생시키며, 이러한 차이는 Urbanic-Heidrich 상관식에 사용된 반응계수  $K(T)$ 가 MATRO-EG&G보다 크기 때문으로 여겨진다. 또한 전체적으로 Urbanic-Heidrich 상관식이 MATPRO-EG&G 상관식보다 보수적인 값을 제시하지만 노심용융 이후의 사고진행은 산화반응뿐 만 아니라 다양한 노내 중대사고현상에 의해 영향을 받는다.

상관식		Urbanic-Heidrich	MATPRO-EG&G
사고진행		상관식 (1853° K)	상관식 (1853° K)
노심용융시작		8089초	8484초
용융물 제배치		8758 초	9174 초
노심하부파손		8791 초	9226 초
수소 생성량	노심용융시작	55.9kg	58.9 kg
	노심하부파손	184kg	130.6kg

표 1 각 모델의 주요 사고분석결과

### 4. 전이온도 민감도 분석

전이온도는 온도가 증가함에 따라  $ZrO_2$  의 물질형태가 Tetragonal형태에서 산소의 확산계수가 훨씬 큰 Cubic구조로 상변화되어 산화반응이 급격히 증가되는 경계온도이다. 앞에서 기술된 대표적인 모델에서는 전이온도가 1853° K이지만 일부모델에서는 1773° K 또는 1875° K를 선택하고있다. 이와같은 전이온도는 Zr-O 상변화 도표상의 전이온도값이다. 따라서 피복관을 통한 산소 확산을 고려하고 있지 않은 상관식으로부터 산화반응을 예측하기보다는 오히려 다른 값이 더 적절할 수 있다.

1) 전이온도를 1773° K로 변경한 경우

MATRO-EG&G의 두 관계식 중에서 저온에서 적용하는 값이 전이온도1773° K까지는 매우 잘 맞는 것으로 알려져 있다. 그래서 전이온도를 1773° K로 변경하여 분석하여 보았다. 표2의 노심용융시간을 비교하면, Urbanic-Heidrich은 14초정도, MATRO-EG&G는100초 정도 밖에 빨라 지지 않아 영향이 거의 없음을 보여준다. 그러나 노심하부파손 시간을 볼 때, Urbanic-Heidrich은 오히려 292초 빨라지고 MATRO-EG&G는 83초정도 늦어진다. 또한 수소 생성량은 노심하부 파손시까지 볼 때, MATRO-EG&G는 6.2kg 증가하지만 Urbanic-Heidrich는 오히려 14.1kg감소한다.

2) 전이온도를 1875° K로 변경한 경우

특정 중대사고 분석코드에서는 산화반응 상관식을 3개로 구분하여 사용하는 데 이때 1875° K 을 경계온도로 추가한다. [4] 전이온도 1875° K에서 수행한 표2의 결과로 볼 때 사고진행은 MATRO-EG&G의 노심하부파손을 빼고는 전이온도 1853° K의 경우와 별 차이 없다. 그러나 이때의 수소 생성량은 전이온도 1853° K보다 Urbanic-Heidrich이 18kg , MATRO-EG&G이 60kg 더 많이 발생 시킨다.

상관식		Urbanic-Heidrich 상관식		MATPRO-EG&G 상관식	
		1773° K	1875° K	1773° K	1875° K
사고진행					
노심용융시작		8076초	8095 초	8380 초	8487 초
용융물 재배치		8451 초	8732 초	9177 초	9176 초
노심하부파손		8498 초	8761 초	9309 초	10139 초
수소 생성량	노심용융시작	59.8 kg	54.4 kg	50.44 kg	46.7 kg
	노심하부파손	161.9 kg	202 kg	136.8kg	190.7kg

표2 Urbanic-Heidrich / MATRO-EG&G 상관식 전이온도 민감도분석

5. 결론

현재 MELCOR와 SCDAP/RELAP5에서 사용중인 산화반응모델의 반응계수를 MELCOR에 입력하여 반응계수가 노심손상에 미치는 영향을 연구 하였다. 각 모델간의 노심용융 시작시간과 노심용융시점에서의 수소생성량은 약 5%를 차이를 보여 비교적 차이가 없는 것으로 나타났다.

다만 노심하부파손 때의 수소량은 Urbanic-Heidrich 상관식의 경우가 MATPRO-EG&G 상관식의 경우 보다 1.4배 정도 더 많이 발생하는 것으로 나타나는데, 이것은 노심용융 이후의 사고진행에 따른 영향과 산화모델 상관식의 복합적인 효과 때문으로 판단된다. 또한 전이온도의 변경에 따른 민감도분석결과에 따르면 사고진행시간은 별 차이가 없지만 수소생성량은 상관식에 따라 큰 차이를 나타내고 있다. 수소생성량은 격납건물 건전성 유지와 밀접하게 관련되어 있으므로, 이러한 차이의 근본적인 원인규명을 위해서 심도있는 모델검토 및 PHEBUS-FP와 같은 실험결과와 비교/분석이 필요하다.

## 6. 참고문헌

- [1] R. M. Summers, et al., MELCOR Computer Code Manuals (Version 1.8.3) , NUREG/CR-6119, September 1994
- [2] SCDAP/RELAP5/MOD2 Code Manual, Volume4: “ MATPRO-A Library of Material Properties for Light-Water-Reactor Accident Analysis”, NUREG/CR-5273,EG&G-2555, Vol.4 R3, February 1990
- [3] V. F. Urbanic and T. R. Heidrich, "High-Temperature Oxidation of Zircaloy-2 and Zircaloy-4 in Steam," J. Nuc. Mats., 75, pp. 251-261 ,1978.
- [4] MAAP4 (Modular Accident Analysis Program for LWR Power Plant) Computer Code Manual , May 1994

