

UO₂ 산화에 대한 동적 모델 개발

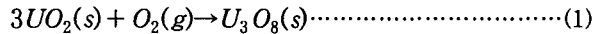
박병홍, 서중석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045 (덕진동 150-1)

bhpark@kaeri.re.kr

UO₂는 고온 산화조건에서 산소와 반응하여 U₃O₈으로 전환된다. 생성된 U₃O₈은 UO₂ 보다 큰 부피를 갖게 되며 이에 따라 UO₂와의 밀도 차이에 의해 분말형태로 얻어지게 된다. 이와 같은 특성은 펠렛 형태의 UO₂를 분말형태의 U₃O₈으로 전환시킴과 동시에 산화물 형태의 사용후핵연료에 존재하는 휘발성 분열 생성물을 제거시키는 건식분말화 공정에 응용되고 있다. 따라서 건식분말화를 위한 반응기 설계 및 공정 조건 설정을 위하여 UO₂의 산화 거동을 정확하게 모사하는 모델은 매우 중요하게 활용된다.

UO₂는 다음과 같이 산소 또는 공기 중의 산소와 반응하여 산화된다.



위 반응은 중간 물질로 U₃O₇/U₄O₉을 생성한 후 U₃O₈으로 산화되는 두단계 반응으로 진행되어 단순한 고체-기체 반응으로는 설명하기 어려운 S자 형태의 산화 거동을 나타내고 있다. 이와 같은 반응을 설명하기 위해 일반적으로 결정생성-성장 모델이 적용되고 있다. 그러나 최근 고체 반응에서 S자 형태의 거동을 모사하는 통계역학에 기반한 모델을 적용할 경우 보다 간단한 수식으로 정확하게 모사할 수 있는 연구가 진행되고 있다.

본 연구에서는 UO₂ 산화에 참여하는 반응지점의 활성화 에너지가 통계역학적인 분포를 가지며 그 분포는 Weibull distribution을 따른다는 가정하에 구형 및 펠렛 형태의 UO₂ 산화에 대해 적용 가능한 모델을 제시하였다. UO₂ 반응이 Weibull distribution을 따르는 경우 UO₂의 U₃O₈으로의 전환율은 다음과 같이 표현된다.

$$a(t) = 1 - \exp\left\{-\left(\frac{t}{\lambda}\right)^k\right\} \dots\dots\dots(2)$$

위 식에서 a는 시간에 대한 전환율이며 λ와 k는 각각 Weibull distribution 함수의 스칼라 및 형태를 나타내는 파라미터이다. 위 식은 UO₂가 최종적으로 U₃O₈으로 전환 가능한 온도 범위에서 적용가능하며 전환율이 1 보다 낮은 영역을 위해서는 최대 전환율이 세 번째 파라미터로 필요하게 된다.

제시된 Weibull distribution 모델은 반응 기체 확산 등의 항을 포함하지 않고 있기 때문에 시간에 따른 전환율을 UO₂의 형태에 관계없이 모사할 수 있다. 그러나 모델의 두 파라미터는 UO₂의 조사 여부 및 연소도와 구형 또는 펠렛 형태 등 UO₂의 모양에 따라 다르게 결정된다. 직경 14.28 mm와 20.12 mm 길이의 펠렛 미조사 UO₂에 대한 계산 결과와 사용된 매개변수 값 및 실험 데이터와의 정확도를 Fig.1와 Table 1에 각각 나타내었다. Fig.1에서 보이는 것과 같이 제시된 모델은 S-형태의 산화거동을 나타내고 있으며 UO₂ 산화반응이 발생하는 336 °C에서 454 °C 사이의 영역에서 실험데이터를 정확히 모사하고 있다. 또한 온도가 상승함에 따라 보다 정확한 값을 제시하고 있다.

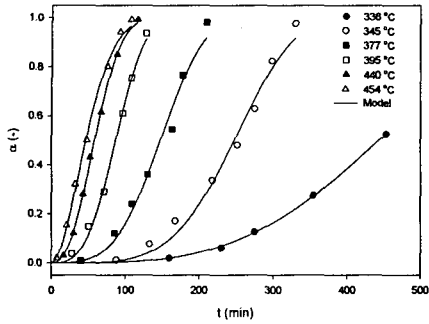


Fig.1 Calculation results for UO₂ pellets.

Table 1. Parameters of model and deviations.

T(°C)	λ	k	AAD*
336	492.1459	3.4957	0.0035
345	268.9311	4.4374	0.0343
377	163.1396	3.5964	0.0343
395	97.0015	3.1967	0.0178
440	67.4077	2.4531	0.0088
454	56.3505	1.8575	0.0178

*AAD = $1/N \sum |\alpha_{i,data} - \alpha_{i,cal}|$

본 연구에서 제시된 모델을 사용하면 UO₂ 산화를 시간에 대해 모사할 수 있으며 건식분말화 공정에서 발생하는 금속원소-산소의 반응을 고려하는 화학반응식과 결합할 경우 건식분말화 반응에 대한 공정 모사에 활용될 것이 기대된다.