2001 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

MCNP분석을 이용한 이산화우라늄내 핵분열기체 확산계수 측정
Fission Gas Diffusion Coefficient Calculation of Irradiated Urania Fuel Using MCNP Code

김희문, 박광헌

경희대학교
경기도 용인시 기흥읍 서천1리

김봉구, 송근우, 김건식, 주용선, 홍권표, 강영환

한국 원자력 연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

핵분열기체 기체확산 계수값을 계산하기위해 시편을 하나로 원자로에 조사하고 Annealing 시험을 하여 시험후 20분 간격으로 1시간동안 Xe-133 방출량을 측정기로 계수하였다. 계수값을 통해 실제 방사능량을 정량계산하기 위해, 측정기의 효율을 계산한 결과 37.6%이며 에너지에 따른 효율은 배제하였다. 정량분석으로 방출된 Xe- 133의 방사능량을 구하고 이를 토대로 방출비를 구하였다. 그러나 시간에 따른 온도변화로 인해 Booth 모형을 적용하지 않고 온도변화에 따른 과도 확산 방정식을 정립하였다. 과도 확산 방정식을 이용하여 실험 방출비값에 근사하는 확산 계수식의 활성화 에너지(activation Energy)와 계수인자(Pre-Exponential factor)분포를 구하여 Turnbull의 식과 비교분석하였다.

Abstract

Annealing test of natural urania specimen was performed to abtain the fission gas release coefficient of Xe-133 after specimen was irradiated in HANARO reactor. Ge detector was used to get released Xe-133 peak in each 20 minutes up to 1 hour. To calculate real activity of released Xe-133, absolute efficiency of Ge detector was abtained through the measurement of Cs-137 reference source and MCNP code. As result of quantatative analysis, efficiency is 37.6%. Finally, fission gas release fraction was abtained but it was not adapted, because Temperatures was dependent as time. So new diffusion equation with time dependent temperature was introduced in this paper. It is available to get distribution of activation energy and pre-exponential factor in diffusion coeffient eqation in coincident with real release fraction. It was compareed with Turnbull's equation.

1. 서 론

가동중인 원자로내의 핵연료봉은 연소도가 높을수록 핵분열 기체의 방출이 커짐으로 인해 핵연료의 온도상승 및 내부압력을 증가시켜 핵연료봉의 건전성을 저하시킨다. 따라서 핵연료내에 발생되 핵분열성 기체 방출 거동을 예측하는 것이 매우 중요한 관건이다. 핵분열 기체 방출 모형은 대개 온도의 지배적인 핵분열 기체 확산계수값을 아는 것이 중요한데, 본 연구에서는 Xe-133의 핵종으로부터 핵분열 기체 확산계수값을 실험과 계산을 통하여 구하므로서 이를 알아보고자 하였다. 그래서 Annealing 시험을 통하여 온도변화에 따른 핵분열 기체 방출량을 이용하여 확산방정식에 적용, 확산계수값을 알아보았다.

2. 본 론

본 연구는 핵연료내 온도에 변화에 따른 Xe-133의 방출량을 측정 및 계산을 통하여 Xe-133의 확산계수값을 구하고자 한다. 확산계수값을 구하기 위해 핵연료 시편을 조사시키고 조사시킨 핵연료를 Anealing 시험을 통하여 방출된 Xe-133의 기체를 측정하였다.[1)] 측정장비는 Ge 측정기를 이용하여 약 1시간동안 히터를 가열하여 실시간으로 Xe-133 방출량을 측정하였다.

표-1은 Annealing 시험에 사용된 시편의 제원을 나타내었다. 천연 우라늄 시편을 사용하였고 조사후 여러 감마핵종들의 거동 및 선량을 감안하여 12일째에 Annealing 시험을 하였다.

표 1 시편 제원 및 조사내역

구 분	내 용
시 편	단결정 우라니아 분말(25 micron)
시편량	300mg
조사시간	하나로 원자로, HTS 홀, 20분
냉각기간	12일

그림-1은 Annealing 시험동안의 온도분포를 나타낸 그림이고 그림-2는 방출된 Xe-133을 측정기로 20분간격씩 계수를 한 것이다. Annealing 시험은 약 1시간정도 수행하였다.

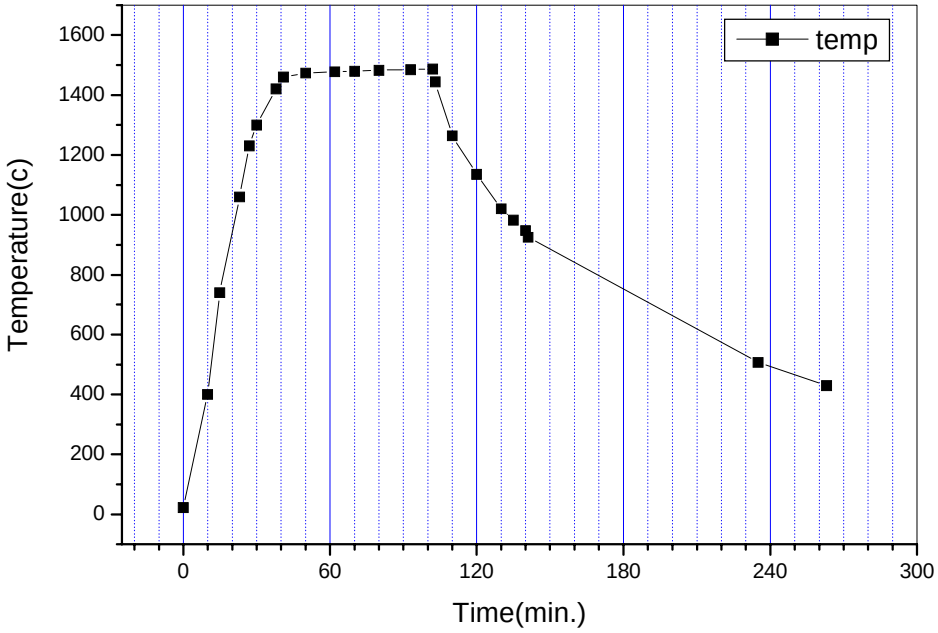

그림 1 Annealing 시험동안의 온도분포

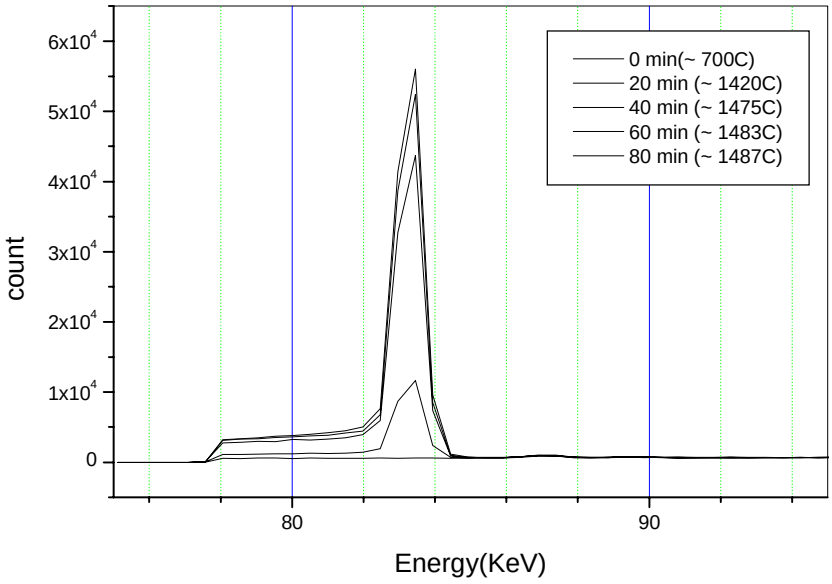

그림 2 Annealing 시험시간에 따라 방출된 Xe-133 계수측정

핵분열 기체의 확산 계수값을 계산하기 위해서는 Booth 모형을 이용하여 구할 수 있는데 그러기위해서는 핵분열기체의 방출비와 시간을 알아야 한다 그러나 방출비를 구하기 위해선 시편내의 Xe-133 발생량을 측정기로 계수해야 하는데 Xe-133 방출량을 측정하던 동일구조로서는 측정이

불가능하다. 따라서 계산에 의한 절대량분석을 해야할 필요가 있다. 그래서 ORIGEN-2[2] 및 MCNP 코드를 이용하여 시편내의 Xe-133의 방사능량과 방출된 Xe-133의 방사능량의 비율을 구하여 핵분열 기체 방출비로 적용하였다. 우선 핵연료내의 Xe-133의 방사능량은 ORIGEN- 코드를 이용하여 Xe-133의 방사능량을 계산한 결과 61.6μCi 정도이고 이값의 타당성을 입증하고자 MCNP 코드를 이용하여 조사공 구조 및 제원을 적용결과, ORIGEN-2 코드와의 15%내의 오차를 보였다.

시간에 따라 방출된 Xe-133의 측정 계수를 이용하여 실재 방사능량을 구하기 위해서는 측정기의 효율이 필요하다. 측정기의 효율에는 세 가지가 있는데 첫째로 절대 효율이 있다. 절대효율은 실질적으로 방사능량을 이미 알고 있는 선원을 직접 측정기로 측정하여 나온 계수를 비교하여 효율을 정하는 것을 말한다. 두 번째로 내성(Intrinsic) 효율이 있는데 이것은 측정기에 도달한 감마의 입사 입자에 대한 전기적 펄스를 형성하는 입자 비율을 말한다. 마지막으로 상대적인 효율은 일정 거리에서 NaI 3×3 측정기와 Ge 측정기를 동일 구조로 측정하여 각각의 측정기의 절대효율을 비율로 나타낸 것이다. 본 연구에서 필요한 효율은 바로 절대효율이다. 그러나 이 효율들은 측정기의 에너지범위에 따라 또한 효율값이 달라진다.

따라서, 본연구에서는 에너지 범위에 따른 효율은 모도 같다는 가정을 하고 절대 효율값을 구하기 위해 Cs-137 선원을 참고 선원으로 이용하여 절대 효율을 구하였다. 우선, CS-137 점선원을 이용하여 공기중 50cm 떨어진 거리에서 20분간 측정하였고 이것을 MCNP 코드를 이용하여 계산을 하였다. 이때 Cs-137 의 방사능량은 65 Ci 이며 20분간 계수하여 실계수율을 구하고 이것을 방사능량과 비교하여 효율을 구하였다. 또한 MCNP 코드를 이용하여 동일구조로 계산하여 측정기 효율을 실험과 비교하였다.

또한, 그림-3에서 보듯이 실재 Xe-133을 측정하였던 구조를 그대로 하여 Xe-133이 축적되는 활성탄 내부에 Cs-137을 넣어 측정하였고, MCNP 코드를 이용하여 효율을 구하여 공기중에 측정한 자료와 비교하였다. 표-2는 MCNP 코드 묘사를 위한 실재 실험시에 사용되었던 물질들의 밀도를 나타내었다.

표-3은 Cs-137 점선원 측정을 통한 실험과 MCNP 코드값의 비교 및 측정기 효율을 구한 것이다. 효율측정시 Cs-137을 활성탄에 넣고 그림-3과 같이 측정기의 위치를 납상자 구멍에 넣은 구조로 측정을 하던중 불감시간이 너무커서 납상자로부터 측정기를 60cm 떨어뜨려 측정하였다. 따라서 MNCP 코드 구조묘사도 60cm 떨어진 구조로 바꿔 계산하였다.

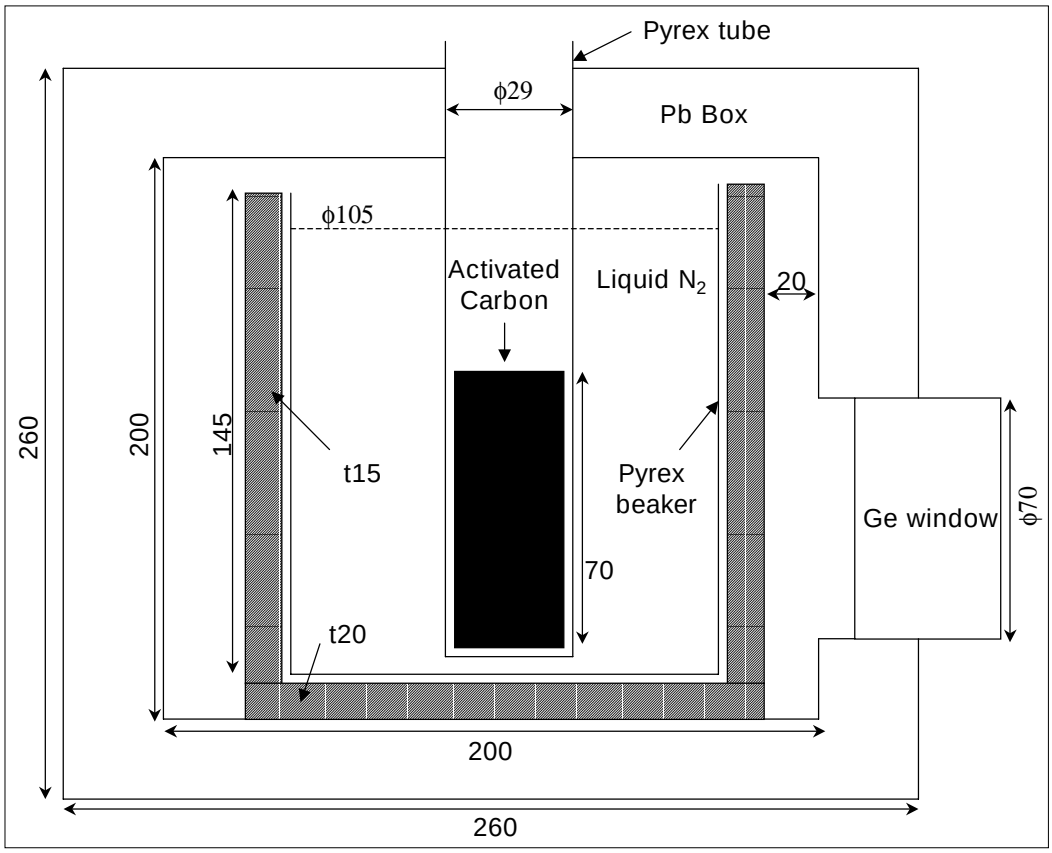

그림 3 MCNP 코드를 위한 Trap 구조물의 도면

표 2 MCNP 코드에 적용된 물질의 종류 및 물성치

물 질	기 호	밀도(g/cm^3)
납	Pb	11.34
유리(Pyrex)	SiO_2	2.22
Poly Ethelene insulator	C_2H_4	0.2 (0.1)
활성탄	C	0.52 (0.26)
액체 질소	N_2	0.81[-196℃, 1atm]

() : bulk density including air(50%)

표 3 Cs-137 측정값과 MCNP 코드값의 비교 및 측정기 효율 계산

구 조	측정값			MCNP 계산값	효율비	실제 효율
	전체량	백그라운드량	실제량			
공기중 50cm 거리	312190	24654	287536	884945	0.325	37.6%
납상자에서 60cm 거리	222166	17881	204285	543377	0.375	

표-3에서 실제 효율계산은 2가지 경우의 실험과 계산의 평균과 Cs-137 의 662KeV의 감마를 방출하며 붕괴할 확률이 93%임을 감안하여 계산한 값이다.

그림-4는 MCNP 코드계산에 의한 계수값을 효율에 적용하여 절대 방사능량을 나타낸 그림이다. 이때, 코드 계산을 위해 발생된 Xe-133이 활성탄내의 분포를 고려하여 활성탄부피 자체를 선원으로 보는 부피선원과 활성탄 위부분에서의 국부적인 축적을 고려한 미세부피선원으로 보는 2가지 경우에 대해서 계산하였으며 결과는 거의 비슷하게 나타났다.

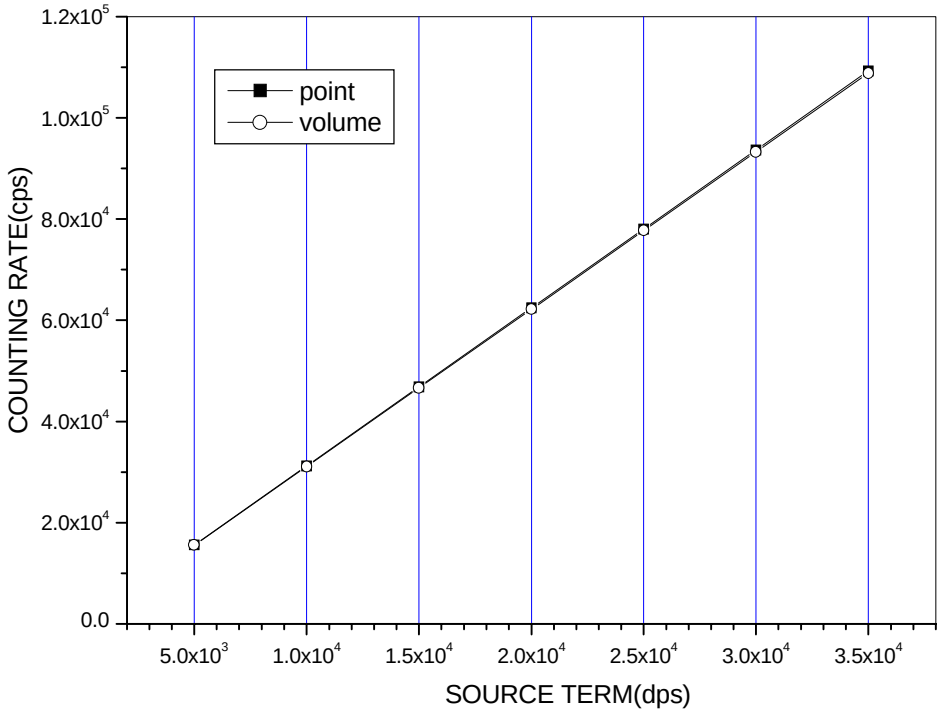

그림 4 Xe-133 측정 계수 및 측정효율을 적용한 실재 방출된 방사능량 분포

따라서 실험에 의한 계수값을 이용하여 표-4와 같이 실재 방사능량과 방출비를 계산하였다. 이때, Xe-133의 초기 시편내 방사능량은 ORIGEN-2코드를 이용한 결과, 61.6μCi 이다.

표 4 실제 측정 계수로부터 Xe-133의 방사능량 계산 및 방출비

시 간	측정값			계산된 Xe-133 Activity(μCi)	방출비
	전체량	백그라운드량	실제량		
20분	25278	6537.5	18740.5	0.17	0.0027
40분	90623	17135	73488	0.67	0.01
60분	107434	19490	87944	0.80	0.013

표-4 처럼 방출비를 이용하여 Booth 모형에 따라 확산계수를 계산하고자 하였으나 Annealing 시험동안 시간에 따라 온도 변화로 인해 Booth 모형으로는 확산계수를 구할 수가 없다. 그래서 시간과 온도 종속에 따른 새로운 과도 확산방정식을 이용하여 확산 계수를 구할 필요가 있다.[3)]

본 실험에 맞게 확산 방정식을 쓰면

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{D}{r}\frac{\partial^2 (rC)}{\partial r^2} \qquad \text{식(1)}$$

이것을 u = rC 로하여 다시 쓰면

$$\frac{1}{r}\frac{\partial u}{\partial t} = \frac{D}{r}\frac{\partial^2 u}{\partial r^2}$$
$$\frac{\partial u}{\partial t} = D\frac{\partial^2 u}{\partial r^2} \qquad \text{식(2)}$$

이다. 여기에 따르는 조건은 다음과 같다.

t=0 일 때, C(r,0) = f(r) , 여기서 f(r)은 C_0를 반경에 따른 분포식으로 나타낸 것이다.

r= a 일 때, C(a,t) = 0

r = 0 일 때, finite

따라서 해는 다음과 같다.

$$C(r,t) = \frac{2}{ar}\sum_{n=1}^{\infty}(e^{-Dn^2\pi^2 t/a^2}) \cdot \sin(\frac{n\pi r}{a}) \int_0^a r' f(r') \sin\frac{n\pi r'}{a} dr' \qquad \text{식(3)}$$

여기서 결정립 구에 남아 있는 총 핵분열 기체 농도는 아래와 같다.

$$\int_0^a C(r,t) \cdot 4\pi r dr \qquad \text{식(4)}$$

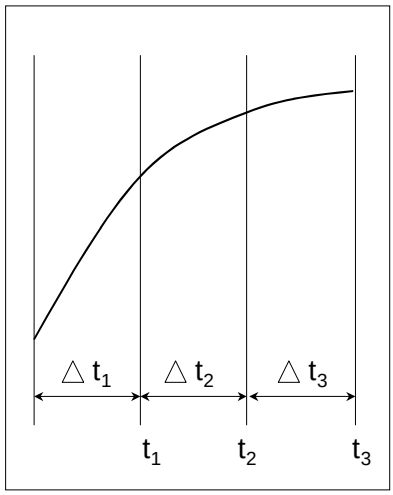

그림 5 과도 확산 방정식 개요

따라서 그림-5와같이 온도 변화 조건에 맞는 시구간 계산을 하기 위해 핵분열 기체 농도는 첫 번째 시구간에서 다음과 같다.

$$C_1(r,t) = \frac{2}{ar}\sum_{n=1}^{\infty}(e^{-Dn^2\pi^2t/a^2}) \cdot \sin(\frac{n\pi r}{a}) \int_0^a r' C_0 \sin\frac{n\pi r'}{a}\, dr'$$

$$= -\frac{2C_0 a}{\pi r}\sum_{n=1}^{\infty} e^{-Dn^2\pi^2t/a^2} \cdot \frac{(-1)^n}{n} \cdot \sin\frac{n\pi r}{a} \qquad \text{식(5)}$$

이것을 식(4)에 적용하여 t_1 까지 남아 있는 량을 계산하면

$$\int_0^a C_1(r,\Delta t_1)\cdot 4\pi r dr = \int_0^a -8C_0 a\sum_{n=1}^{\infty} e^{-D_1 n^2\pi^2\Delta t_1/a^2} \cdot \frac{(-1)^n}{n} \cdot r\sin\frac{n\pi r}{a}\, dr$$

$$= \frac{8C_0 a^3}{\pi}\sum_{n=1}^{\infty}\frac{1}{n^2} e^{-D_1 n^2\pi^2\Delta t_1/a^2} \qquad \text{식(6)}$$

같은 방법으로 두번째 시구간 t_2 에서의 농도와 t_2까지의 남아있는 량을 계산하면

$$C_2(r,t) = \frac{2}{ar}\sum_{n=1}^{\infty}(e^{-Dn^2\pi^2t/a^2}) \cdot \sin(\frac{n\pi r}{a}) \int_0^a r' C_1(r,t) \sin\frac{n\pi r'}{a}\, dr'$$

$$= -\frac{2C_0 a}{\pi r}\sum_{n=1}^{\infty} e^{-D_1 n^2\pi^2\Delta t/a^2} e^{-D_2 n^2\pi^2 t/a^2} \cdot \frac{(-1)^n}{n} \cdot \sin\frac{n\pi r}{a} \qquad \text{식(7)}$$

$$\int_0^a C_2(r,\Delta t_2)\cdot 4\pi r dr = \int_0^a -8C_0 a \sum_{n=1}^{\infty} e^{-D_1 n^2\pi^2\Delta t_1/a^2} \sum_{n=1}^{\infty} e^{-D_2 n^2\pi^2\Delta t_2/a^2}\cdot \frac{(-1)^n}{n}\cdot r\sin\frac{n\pi r}{a} dr$$

$$= \frac{8C_0 a^3}{\pi}\sum_{n=1}^{\infty}\frac{1}{n^2} e^{-D_1 n^2\pi^2\Delta t_1/a^2} e^{-D_2 n^2\pi^2\Delta t_2/a^2} \qquad \text{식(8)}$$

위의 식들을 정리하여 i 번째 시구간까지의 총 남아있는 량을 구하면

$$\frac{8C_0 a^3}{\pi}\sum_{n=1}^{\infty}\frac{1}{n^2} e^{-n^2\pi^2(D_1\Delta t_1 + D_2\Delta t_2 + D_3\Delta t_3 + \cdots D_i\Delta t_i)/a^2} \qquad \text{식(9)}$$

따라서 t_i 까지의 총 방출비를 계산하면 아래와 같이 된다.

$$\text{i-시간까지의 총방출비} = 1 - \frac{\frac{8C_0 a^3}{\pi}\sum_{n=1}^{\infty}\frac{1}{n^2} e^{-n^2\pi^2(D_1\Delta t_1 + D_2\Delta t_2 + D_3\Delta t_3 + \cdots D_i\Delta t_i)/a^2}}{\frac{4}{3}\pi C_0 a^3}$$

$$= 1 - \frac{6}{\pi^2}\sum_{n=1}^{\infty}\frac{1}{n^2} e^{-n^2\pi^2(D_1\Delta t_1 + D_2\Delta t_2 + D_3\Delta t_3 + \cdots D_i\Delta t_i)/a^2} \qquad \text{식(10)}$$

식(10)을 이용하여 MCNP를 이용한 방출비에 근사하는 방출비의 값을 찾기위해 확산계수값을 변화시켜 보았다.

$$D = D_0\cdot e^{-Q/RT} \qquad \text{식(11)}$$

식(11)은 확산계수값의 기본식이며 Q값과 D_0 값을 변화시키면서 MCNP를 이용한 방출비에 근사하도록 하였다. 그림-5는 실제 측정값과 가장 근사한 방출비를 나타내는 Q,값과 D_0 값을 나타내었다. 이 값을 Turnbull[4] 이 제시한 확산계수값과 비교해 볼 때 거의 비슷함을 알 수 있다.

그러나 Xe-133 의 측정 계수에 의한 3개의 방출비 자료들이 명확하지가 않아서 이중 60분에 측정한 자료만 비교하였다.

3. 결 론

본 연구에서 시편내의 Xe-133의 발생량을 측정기로 측정하는데 어려움이 있어 핵분열 기체 방출비를 정량분석으로 계산하였다. 따라서 Ge 측정기의 효율을 실험과 코드를 이용하여 계산하였고 비교해본 결과 거의 일치하는 것으로 나타났다. 온도변화에 따른 확산계수값을 구하기위해 과도확산 방정식을 유도하여 실험적 방출비에 근사하는 활성화에너지와 pre-exponential 인자의 분포를 알아보았다. 그러나 이 연구에는 측정기의 효율 계산에 있어서 고려한 가정과 Xe-133의 짧은 Annealing 시험, 그리고 측정 계수의 실험자료가 명확하지 않아 핵분열 기체 확산계수값을 구하

는데 어려움이 많았다. 그러나 차후에는 Anealing 시험을 시간에 따른 온도변화를 주어 새로운 과도 확산방정식을 이용하여 쉽게 핵분열 기체 확산 계수를 계산 할 수 있는 기반을 마련하였다.

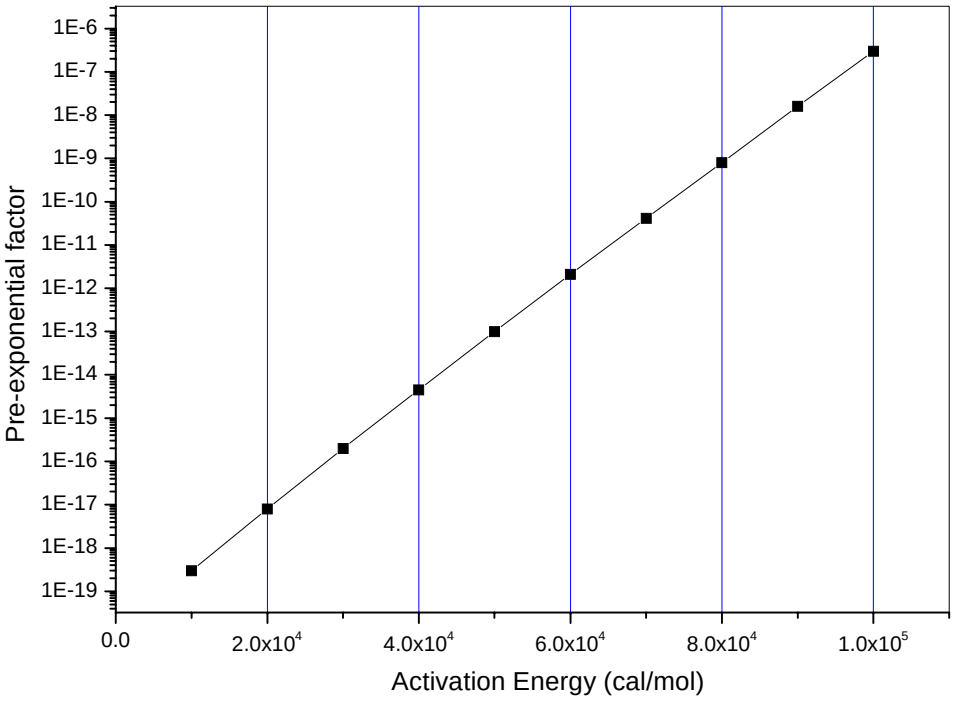

그림 6 확산 계수식에서의 활성 에너지와 D_0 값의 분포

감사의 글

본 연구는 과기부의 하나로 공동 이용 활성화 사업의 지원에 의해 수행한 연구입니다.

4. 참고문헌

1) Donald R. Olander, " Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements".
2) RSIC Computer Code Collection - ORIGEN 2.1-, Oak Ridge National Laboratory, (1980)
3) H.S.Carslaw, J.C.Jaeger ,"Conduction of Heat in Solids.", Oxford University Press. (1959)
4) J.A.Turnbull, C.A.Friskney, " The Diffusion Coefficients of Gaseous and Volatile Species During The Irradiation of Uranium Dioxide.", J.Nucl.Mater. 107(1982) 168p