

## 해석적 고연소 핵분열 생성물 방출 2 단계 확산 모델 개발

### Development of Two-stage fission Gas Release Model

김용수, 국동학

한양대학교  
서울특별시 성동구 행당동 17

이찬복, 방제건, 김대호, 정연호

한국원자력연구소  
대전직할시 유성구 덕진동 150

#### 요 약

최근 원자로의 고연소, 장주기 운전에 따라 고연소도 핵연료봉에서의 정확한 핵분열 생성물 방출량의 새로운 평가방법론에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 이에 발맞추어 이 연구에서는  $UO_2$  결정입자와 입계면에서의 확산을 수학적으로 모사한 2 단계 방출 개념의 해석적 모델을 개발하였다. 이 모델은 기본적으로 핵분열 생성 기체의 확산 과정을 실제 노내 상황과 같이 기지 내 확산과 입계면 내 확산 방출의 두 단계로 나누어 정의하고 이들 확산 계수의 비를 인자로 하는 해석적 확산방정식으로 구성된다. 평가 결과 이 모델은 고연소 핵연료에서의 가속적 기체 방출을 잘 모사하고 있을 뿐만 아니라 수학적 formulation에서 적용한 대로 입계면에서의 기체 방출이 매우 클 경우 ANS5.4 모델과 동일하고 반대의 경우 예상대로 방출이 크게 지연될 수 있다는 것을 보여주고 있다. 이 모델은 추후 rim effect와 같은 국부적인 영향과 과도 상태 평가가 가능토록 추가적으로 개발될 예정이다.

#### Abstract

Based on the review of the current mechanistic diffusion models for high burn-up fission gas release prediction, an analytical two stage model is developed which mathematically simulates the two step diffusion processes of fission gas release: matrix diffusion and grain boundary diffusion. Solution of the model depends on the ratio of the diffusivities in the both processes. It turns out that the model describes the high burn-up behavior of the fission gas release very well and predicts the exactly same release fraction as ANS5.4 model does when its diffusivity in the grain boundary goes to infinity. In the next step, this model will turn into a more comprehensive analytical model which takes local high burn-up effect such as rim-effect and transient release into consideration.

#### 1. 서론

원자력 발전소 운전시 핵분열 반응에 의해 생성되는 핵연료내 핵분열 생성물의 거동은 핵연료의 열적, 기계적 성능에 중대한 영향을 미치고 이에 따라 많은 원자력 발전소의 운전 지침은 실제로 이들 핵분열 생성물의 과다 방출을 억제하기 위한 조처들이 근간을 이루고 있다. 만약 핵연료 피복관이 장기간 연소에 의해 핵연료봉 내에 축적된 핵분열 생성물 방출은 발전소 내 1 차 냉각수의 방사선 오염을 증가시키게 되고 만일 이 오염이 기준치를 넘을 경우 출력 감소 운전과 손상 핵연료의 대체를 위한 발전소 운전 중지 등의 사태 등도 야기시킬 수 있다. 또한 부식 반응성이 높은 핵분열 생성물은 핵연료 피복관의 손상을 촉진시키게 되어 생성물 방출, 피복관 손상, 생성물 방출 가속 등 일련의 현상을 유도하게 될 수도 있다.

이처럼 핵분열 생성물 방출 거동에 관한 연구의 중요성에도 불구하고 국내의 연구는 독자적인 검증 자료 없이 기존의 외국 코드를 그대로 사용하고 있고 이에 관한 연구 또한

전산코드내의 인자 변화 연구가 주종을 이루고 있는 실정이다. 한편, 미국 등 주요 원자력 선진국에서는 기존의 각종 운전 및 실험자료의 바탕으로 고연소, 장주기 연소에 의한 핵분열 생성물 방출 기구에 관한 연구를 활발히 진행시켜 그 연구 결과들을 기존의 전산 코드 내에 대체 삽입하고 있다.

따라서 본 연구에서는 국내에서 진행되고 있는 고연소 핵연료 개발과 고연소 핵분열 생성물 방출 기구에 대한 독자적 모델 개발 노력에 발맞추어 핵분열 생성물의 기지 내 확산과 입계면 확산을 수학적으로 모사하는 해석적 2 단계 고연소 핵분열 생성물 방출 모델을 개발하였다.

## 2. 기존 핵분열 생성물 방출 모델 분석

Booth는 핵연료의 결정을 임의의 구라고 가정하고 핵분열 생성물이 구 표면으로 확산되어 나왔을 때 전부 방출한다는 가정에서 출발한 최초의 해석적/역학적 확산방정식을 제시하였다. [1]. 이후 이 모델은 여러 in-pile 자료의 평가를 통해 확산 계수 값을 갖게 되고 ANS5.4의 기본 모델로 채택되게 된다[2,3]. 이 모델의 인자로는 local temperature, local burn-up, time interval 들을 들 수 있는데 안정한 핵분열 핵종의 경우 이 모델에 의한 방출비는 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

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

$$F = 1 - \frac{6}{\tau} \sum_{n=1}^{\infty} \left\{ \frac{1}{(n\pi)^4} [1 - \exp(-n^2\pi^2\tau)] \right\} \quad \text{when } \pi^2\tau > 1$$

여기서,  $\tau = Dt/a^2 = D't$ ,  $D' = [(D_0/a^2)\exp(-Q/RT)] \times 100^{Bu/28000}$ ,  $Q = 72,300$  cal/mol,  $R = 1.987$  cal/mol-K,  $D_0/a^2 = 0.61$  sec<sup>-1</sup>, Bu는 국부적 연소도이다.

위 모델에서 사용된, 활성화 에너지 Q 값은 400~60,000 MWd/MTU 연소도 영역의 경수로와 고속증식로 실험결과에 의한 값이다. 이 모델에서 D와 a<sup>2</sup>은 분리하여 생각할 수 없고, 고연소도에서의 버블 형성 등이 고려되지 않아 저연소도 핵분열 생성물 방출에만 적당한 단점을 지니고 있음에도 불구하고 현재까지 NRC가 고연소 핵연료 성능 감사 계산용으로 채택하고 있을 정도로 활용성이 높은 모델이다. 또한 너무 보수적인 diffusivity 값을 개선하기 위하여 그동안 축적된 in-pile 자료값을 근거로 modified ANS5.4 모델[4]을 선보이게 되었는데 이 모델에서는 유효 확산 계수의 값이  $22.1 \times 10^4$  sec로 수정되었고 온도에 의한 활성화 에너지 값도 72,300 cal/mole에서 49,700 cal/mole로 조정되었다.

Booth 모델에서의 가정과는 달리 핵분열 기체 원자들은 실제로 결정립계에서 지속적으로 쌓이고 또한 조사 중 핵분열에 의해 결정립계 버블 내에 있는 원자들이 핵연료 기지 내로 방출되는 현상들이 그림 1과 같은 전자현미경 사진으로 확인되었다. 따라서 Speight[5]은 이러한 현상을 고려하여 다음과 같이 기지 내와 기지 내 버블 속의 핵분열 생성 기체에 대한 두개의 지배방정식을 세워 문제를 풀었다.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \beta + DV^2C - gC + bm$$

$$\frac{\partial m}{\partial t} = gC - bm$$

여기서 C는 국부적 핵분열 기체 평균 농도, m은 버블 내에 있는 기체의 양, 그리고 g는 핵분열 기체가 버블에 포획될 확률, b는 버블 내에서 핵연료 기지 내로 방출되는 확률이고 유효확산계수,  $D_{eff} = bD/(b+g)$ ,를 도입하여 위 연립미분방정식을 풀어 핵분열 생성물 방출비를

아래와 같이 제안하였다. 이때 만일 결정립계 단위 면적에 존재하는 핵분열 기체의 양,  $N_{gb}$ , 이 존재한다면 결정립계 단위 부피에 존재하는 핵분열 기체의 농도는  $C_{gb}=b\lambda N_{gb}/2D$  와 같이 될 것이라고 제안하였는데 결정립계를 non-perfect sink 로 생각함으로써 Booth 모델보다 진일보하였다고 평가할 수 있다.

$$F - bN_{gb} \cong F_0 \left( \frac{C_m - C_{gb}}{C_m} \right) = F_0 \{1 - (b + g)\lambda N_{gb} / 2D\beta t\}$$

여기서  $C_m = b\beta t / (b + g)$  이다.

Turnbull[6]은 결정립계에서 핵분열 기체가 perfect sink 처럼 방출되지 않고 결정립계 버블 내에 일정 양의 농도가 쌓이고 그 양이 포화농도를 넘어서게 되면 방출된다는 개념으로 위 모델들과 같은 지배 방정식에 Speight 가 제안한 결정립계에 존재하는 농도를 일정하다고 가정하여 다음과 같은 해를 도출하였다.

$$F = 4\sqrt{\frac{\tau}{\pi}} - \frac{3}{2}\tau + \frac{C_0 - C_{gb}}{\beta t} \left[ 6\sqrt{\frac{\tau}{\pi}} - 3\tau \right] \quad \text{when } \pi^2\tau < 1$$

$$F = 1 - \frac{6}{\beta t} \sum_{n=1}^{\infty} \left\{ \frac{\beta a^2}{(n\pi)^4} - \frac{C_0 - C_{gb}}{(n\pi)^2} \right\} \{1 - \exp(-n^2\pi^2\tau)\} \quad \text{when } \pi^2\tau > 1$$

위에서  $C_0=C_{gb}$  이면 Booth 해와 같게 된다.

Forsberg & Massih [7] 역시 위에서 기술한 결정립계 경계면에 핵분열 생성기체가 존재한다는 개념을 사용하고 있지만 Turnbull 이 시간에 무관한 상수값을 가정한 것과는 달리 아래와 같이 시간에 따라 변하는 양으로 가정하고 문제에 접근하였다.

$$C_v(a, t) = C_{gb}(t) = \frac{b(t)N_{gb}(t)}{2D(t)}\lambda$$

NRC 의 감사 계산용으로 개발된 FRAPCON-3 에서 채택하고 있는 이 모델은 경계면 버블내의 기체농도가 포화 농도 이상이 되면 그때까지 쌓인 모든 핵분열 기체가 방출된다고 가정하였다. 그러나 방정식의 해를 구하기 위한 경계조건으로 사용되는 윗 식은 시간에 따라 변화하는 세가지 인자들에 대한 값을 알기가 어렵다는 단점을 내포하고 있다.

그림 3 에서는 이제까지 발표된 여러 중요한 모델들을 비교 평가하였다.

### 3. 해석적 고연소 핵분열 생성물 방출 모델의 개발

#### 3.1 수학적 모사

UO<sub>2</sub> gordusfy 소결체 내부에서 생성된 핵분열 생성기체는 먼저 결정입자 기지내 확산을 통해 입계면으로 빠져나오고 다시 결정입계면을 따라 확산하다 결정입자의 모서리와 꼭지에 도달하면 방출된다. 이 두 과정을 그림 2 에 도시하였으며 이를 수식화하면 아래와 같다

| Diffusion | matrix   | at grain boundary   |
|-----------|--|---|
| G.E.      | $\frac{\partial C_v}{\partial t} = \beta + D_v \nabla^2 C_v$ | $w \frac{\partial C_{gb}}{\partial t} = w D_{gb} \nabla^2 C_{gb} - 2D_v \left( \frac{\partial C_v}{\partial R} \right)_{R=a}$ |
| I.C       | $C_v(R, 0) = 0$  | $C_{gb}(r, 0) = 0$  |
| B.C       | $C_v(0, t) = \text{finite}$<br>$C_v(a, t) = \bar{C}_{gb}(t)$ | $C_{gb}(0, t) = \text{finite}$<br>$C_{gb}(b, t) = 0$  |

이때 입계면에서의 농도 방정식에 등장한  $D_v \left( \frac{\partial C_v}{\partial R} \right)_{R=a}$  은 시간에 관한 함수이므로  $g(t)$  라고 놓으면 기본방정식은

$$w D_{gb} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial C_{gb}}{\partial r} \right) - 2g(t) = w \frac{\partial C_{gb}}{\partial t}$$

과 같이 표현되고 이때 다음의 상수를 사용하면,  $\alpha = D_{gb}$  and  $k = -w \frac{D_{gb}}{2}$

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial C_{gb}}{\partial r} \right) + \frac{1}{k} g(t) = \frac{1}{\alpha} \frac{\partial C_{gb}}{\partial t}$$

의 형태를 갖게 된다.

이 방정식의 해는 다음과 같이 Green의 함수를 이용해 풀 수 있다.

$$C_{gb}(r, t) = \frac{\alpha}{k} \int_{\tau=0}^t d\tau \int_{r'=0}^b r' G(r, t | r', \tau) g(r', \tau) dr'$$

이때 Green 함수는 다음 식으로 잘 알려져 있다.

$$G(r, t | r', \tau) = \frac{2}{b^2} \sum_{m=1}^{\infty} \exp[-\alpha \beta_m^2 (t - \tau)] \frac{J_0(\beta_m r)}{J_1^2(\beta_m b)} J_0(\beta_m r')$$

따라서

$$C_{gb}(r, t) = \frac{2\alpha}{kb^2} \sum_{m=1}^{\infty} \exp[-\alpha \beta_m^2 t] \frac{J_0(\beta_m r)}{J_1^2(\beta_m b)} \int_{\tau=0}^t \exp[\alpha \beta_m^2 \tau] g(\tau) d\tau \int_{r'=0}^b r' J_0(\beta_m r') dr'$$

이때 r에 관한 적분은 다음과 같은 성질을 갖는다.

$$\int_0^b r' J_0(\beta_m r') dr' = \frac{1}{\beta_m} b J_1(\beta_m b)$$

따라서,

$$\begin{aligned} C_{gb}(r, t) &= \frac{2\alpha}{kb} \sum_{m=1}^{\infty} \exp[-\alpha \beta_m^2 t] \frac{J_0(\beta_m r)}{\beta_m J_1(\beta_m b)} \int_0^t \exp[\alpha \beta_m^2 \tau] g(\tau) d\tau \\ &= -\frac{4}{wb} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{J_0(\beta_m r)}{\beta_m J_1(\beta_m b)} \int_0^t \exp[\alpha \beta_m^2 (\tau - t)] g(\tau) d\tau \end{aligned}$$

적분부분만 자세히 살펴보면

$$\int_0^t \exp[\alpha \beta_m^2 (\tau - t)] g(\tau) d\tau = \int_0^t \left\{ 1 + \alpha \beta_m^2 (\tau - t) + \frac{\alpha^2 \beta_m^4}{2!} (\tau - t)^2 + \frac{\alpha^3 \beta_m^6}{3!} (\tau - t)^3 + \Lambda \right\} g(\tau) d\tau$$

$$= \left\{ 1 - \alpha \beta_m^2 t + \frac{\alpha^2 \beta_m^4}{2!} t^2 - \frac{\alpha^3 \beta_m^6}{3!} t^3 + \Lambda \right\} \int_0^r g(\tau) d\tau$$

따라서 적분을 급수형태로 나타낼 수 있고

$$C_{gb}(r,t) = -\frac{4}{wb} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{J_0(\beta_m r)}{\beta_m J_1(\beta_m b)} \left\{ 1 - \alpha \beta_m^2 t + \frac{\alpha^2 \beta_m^4}{2!} t^2 - \frac{\alpha^3 \beta_m^6}{3!} t^3 + \Lambda \right\} \int_0^r g(\tau) d\tau$$

다음과 같은 값을 얻어낼 수 있다.

$$C_{gb}(r,t) \cong \frac{-4J_0(\beta_0 r)}{wb\beta_0 J_1(\beta_0 b)} \int_0^r g(\tau) d\tau$$

기본방정식의 경계조건을 만족하기 위해서는 결정립계에서의 r에 관한 평균값을 알아야하므로 방금 구한 해를 이용한다.

$$\begin{aligned} \bar{C}_{gb}(t) &= \frac{2}{b^2} \int_0^b C_{gb}(r,t) r dr \\ &= \left( \frac{2}{b^2} \right) \left( \frac{-4}{wb\beta_0 J_1(\beta_0 b)} \right) \left( \int_0^r g(\tau) d\tau \right) \int_0^b J_0(\beta_0 r) \cdot r \cdot dr \end{aligned}$$

r에 관한 적분부분은  $\int_0^b r' J_0(\beta_0 r') dr' = \frac{1}{\beta_0} r J_1(\beta_0 r) \Big|_{r=b}$ 의 성질을 가지므로

$$\bar{C}_{gb}(t) = -\frac{8}{wb^2 \beta_0^2} \frac{J_1(\beta_0 r)}{J_1(\beta_0 b)} \Big|_{r=b} \int_0^r g(\tau) d\tau$$

윗 식과 같은 r에 관한 평균 해를 구할 수 있다.

한편, r에 관한 미분은 다음과 같이 나타낼 수 있고

$$\frac{\partial C_{gb}}{\partial r} = \frac{-4 \int_0^r g(\tau) d\tau}{wb\beta_0 J_1(\beta_0 b)} \frac{\partial}{\partial r} (J_0(\beta_0 r))$$

r에 관한 미분은  $\frac{\partial}{\partial r} \{J_0(\beta_0 r)\} = -\beta_0 J_1(\beta_0 r)$ 의 성질을 가지므로, 경계에서의 값은

$$w \frac{\partial C_{gb}}{\partial r} \Big|_{r=b} = \frac{4}{b} \frac{J_1(\beta_0 r)}{J_1(\beta_0 b)} \Big|_{r=b} \int_0^r g(\tau) d\tau$$

와 같이 나타낼 수 있는데 이 결과는 r에 관한 평균 해와 같이 다음처럼 연결할 수 있다.

$$w \frac{\partial C_{gb}}{\partial r} \Big|_{r=b} = \frac{wb\beta_0^2}{2} \bar{C}_{gb}(t)$$

Quasi-Steady State에서는 결정립에서 방출되는 양과 결정립계에서 방출되는 양의 비율이 단 일하게 볼 수 있으므로

$$\frac{2\pi b w J_{gb} \Big|_{r=b}}{2\pi b^2 J_v \Big|_{R=a}} = \frac{w D_{gb}^{eff}}{b D_v^{eff}} \frac{\frac{\partial C_{gb}}{\partial r} \Big|_{r=b}}{\frac{\partial C_v}{\partial R} \Big|_{R=a}} \cong 1$$

다음과 같은 일련의 과정을 거치면

$$wD_{gb}^{eff} \frac{\partial C_{gb}}{\partial r} \Big|_{r=b} = \frac{wb\beta_0^2 D_{gb}^{eff}}{2} \bar{C}_{gb}(t) = bD_{gb}^{eff} \frac{\partial C_v}{\partial R} \Big|_{R=a}$$

$$\bar{C}_{gb}(t) = \frac{2}{w\beta_0^2} \frac{D_v^{eff}}{D_{gb}^{eff}} \frac{\partial C_v}{\partial R} \Big|_{R=a} \equiv \alpha \frac{\partial C_v}{\partial R} \Big|_{R=a}$$

을 구할 수 있으며 이때  $\alpha = \frac{2D_v^{eff}}{\beta_0^2 w D_{gb}^{eff}}$  의 값을 갖는다.

따라서 기본방정식의 두번째 경계조건은 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$C_v(a,t) = \bar{C}_{gb}(t) = \alpha \frac{\partial C_v}{\partial R} \Big|_{R=a}$$

$$\alpha \frac{\partial C_v}{\partial R} \Big|_{R=a} - C_v(a,t) = 0$$

따라서 이 경계조건을 사용하면 핵분열 생성기체 확산에 대한 두 개의 연립 편미분 방정식을 직접 풀지 않고 결정 입자내에서의 확산 방정식만으로도 입계 면에서의 확산을 충분히 고려할 수 있다.

### 3.2 SOLUTION OF NEW MODEL

이 2 단계 확산모델의 P.I.E 경우와 In-Pile 경우에 대한 해를 구하였다.

#### Case I : P.I.E. FGR

| Diff | Original   | Transformation  | New G.E.   |
|------|--|---|--|
| G.E. | $\frac{\partial C_v}{\partial t} = D_v^{eff} \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial C}{\partial r} \right)$ |   | $\frac{\partial u}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 u}{\partial \eta^2}$  |
| I.C. | $C_v(R,0) = 0$   | $\Rightarrow$   | $u(\eta,0) = \eta$   |
| B.C. | $C_v(0,t) = finite$<br>$\alpha \frac{\partial C_v}{\partial r} \Big _{R=a} - C_v(a,t) = 0$   | $\eta = r/a$<br>$\tau = D_v^{eff} t/a^2$<br>$u = \eta(C/C_0)$ | $u(0,\tau) = 0$<br>$\frac{\alpha}{a} \left\{ \frac{1}{\eta} \left( \frac{\partial u}{\partial \eta} \right) - \frac{1}{\eta^2} u(\eta,\tau) \right\} \Big _{\eta=1} - u(1,\tau)$<br>$= \frac{\alpha}{a} \left\{ \left( \frac{\partial u}{\partial \eta} \right) \Big _{\eta=1} - u(1,\tau) \right\} - u(1,\tau) = 0$ |

기본방정식과 경계 조건을 이용하여  $\tilde{u} = \int_0^\infty e^{-s\tau} u(\eta,\tau) d\tau$  의 Laplace 변환을 하면

$$s \tilde{u} - \eta = \frac{d^2 \tilde{u}}{d\eta^2}$$

$$\frac{\alpha}{a} \left( \frac{\partial \tilde{u}}{\partial \eta} \right) \Big|_{\eta=1} - \left( \frac{\alpha}{a} + 1 \right) \tilde{u}(1) = 0$$

과 같으며 경계조건은  $\tilde{u}(0) = 0$  으로 나타낼 수 있고  $\tilde{u}$  의 일반해는

$$\tilde{u}(\eta) = Ae^{\sqrt{s}\eta} + B^{\sqrt{s}\eta} + \frac{\eta}{s}$$

$$\tilde{u}(\eta) = \frac{1}{s} \frac{e^{\sqrt{s}\eta} - e^{-\sqrt{s}\eta}}{\frac{\alpha}{a}\sqrt{s}(e^{\sqrt{s}} + e^{-\sqrt{s}}) - \left(\frac{\alpha}{a} + 1\right)(e^{\sqrt{s}} - e^{-\sqrt{s}})} + \frac{\eta}{s}$$

Equivalent sphere 의 표면밖으로의 gas atom flux 는

$$J = -D_v^{eff} \left( \frac{\partial C}{\partial r} \right)_{r=a}$$

이고 flux 의 Laplace 변형은 다음과 같다

$$\tilde{J} = -\frac{D_v^{eff} C_0}{a} \left[ \left( \frac{d\tilde{u}}{d\eta} \right)_{\eta=1} - \tilde{u}(1) \right] = \frac{D_v^{eff} C_0}{a} \left[ -\frac{1}{s} \left\{ \frac{\sqrt{s}(e^{\sqrt{s}} + e^{-\sqrt{s}}) - (e^{\sqrt{s}} - e^{-\sqrt{s}})}{\frac{\alpha}{a}\sqrt{s}(e^{\sqrt{s}} + e^{-\sqrt{s}}) - \left(\frac{\alpha}{a} + 1\right)(e^{\sqrt{s}} - e^{-\sqrt{s}})} \right\} \right]$$

$$= \frac{D_v^{eff} C_0}{a} \left[ -\frac{1}{s} \left\{ \frac{\sqrt{s} - \tanh \sqrt{s}}{\frac{\alpha}{a}\sqrt{s} - \left(\frac{\alpha}{a} + 1\right) \tanh \sqrt{s}} \right\} \right]$$

$\tau$  값이 작으면 Laplace 변형 변수  $s$  는 커지므로  $\tanh \sqrt{s}$  값은 1 이 된다. 그러므로

$$\tilde{J} = \frac{D_v^{eff} C_0}{a} \left\{ \frac{1}{s} \cdot \frac{1 - \sqrt{s}}{\frac{\alpha}{a}\sqrt{s} - \left(\frac{\alpha}{a} + 1\right)} \right\} = \frac{D_v^{eff} C_0}{(\alpha + a)} \left\{ \frac{a}{(\alpha + a)} \frac{1}{\sqrt{s}} - \frac{a}{(\alpha + a)} \frac{1}{\sqrt{s} - \frac{(\alpha + a)}{a}} - \frac{1}{s} \right\}$$

Laplace 역수를 취하면

$$J = \frac{D_v^{eff} C_0}{(\alpha + a)} \left[ \frac{a/(\alpha + a)}{\sqrt{\pi\tau}} - \frac{a}{(\alpha + a)} \left\{ \frac{1}{\sqrt{\pi\tau}} - \frac{(\alpha + a)}{\alpha} \exp\left(\frac{(\alpha + a)^2}{\alpha^2} \tau\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{(\alpha + a)}{\alpha} \sqrt{\tau}\right) \right\} - 1 \right]$$

$$= \frac{D_v^{eff} C_0}{(\alpha + a)} \left[ \frac{a}{\alpha} \exp\left(\frac{(\alpha + a)^2}{\alpha^2} \tau\right) \operatorname{erfc}\left\{\left(\frac{(\alpha + a)}{\alpha} \sqrt{\tau}\right)\right\} - 1 \right]$$

따라서 Fission Gas Release 는

$$F \equiv \frac{4\pi a^2 \int_0^\tau J dt'}{\frac{4}{3}\pi a^3 C_0} = \frac{3}{a C_0} \int_0^\tau J dt' = \frac{3}{a C_0} \left( \frac{a^2}{D_v^{eff}} \right) \int_0^\tau J d\tau'$$

$$= \frac{3a}{(\alpha + a)} \left\{ \frac{a}{\alpha} \int_0^\tau \exp\left(\frac{(\alpha + a)^2}{\alpha^2} \tau\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{\alpha + a}{\alpha} \sqrt{\tau}\right) d\tau' - \tau \right\}$$

이 때  $\int_0^\tau \exp\left\{\left(\frac{\alpha + a}{\alpha}\right)^2 \tau\right\} \operatorname{erfc}\left(\frac{\alpha + a}{\alpha} \sqrt{\tau}\right) d\tau'$  부분만 자세히 살펴보면

$$\frac{\alpha + a}{\alpha} \sqrt{\tau} = z \text{ 의 치환을 하면 } d\tau = 2 \left( \frac{\alpha}{\alpha + a} \right)^2 z dz = 2 \left( \frac{\alpha}{\alpha + a} \right)^2 \int_0^\tau z e^{z^2} \operatorname{erfc} z dz'$$

$$z e^{z^2} \operatorname{erfc} z dz = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \left( 1 - \frac{1}{2z^2} + \frac{1 \cdot 3}{4z^4} - \frac{1 \cdot 3 \cdot 5}{8z^6} + \Lambda \right) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{\alpha}{\alpha+a} \right)^2 \left( z + \frac{1}{2z} - \frac{1}{4z^3} + \frac{1 \cdot 3}{8z^5} - \Lambda \right)$$

$z > 1$  이므로

따라서 적분부분은 다음과 같이 귀결되고

$$\cong \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{\alpha}{\alpha+a} \right)^2 z$$

최종적인 Fission Gas Release rate 는

$$F = \frac{3a}{\alpha+a} \left[ \frac{a}{\alpha} \cdot \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \left( \frac{\alpha}{\alpha+a} \right)^2 \left\{ \frac{(\alpha+a)}{\alpha} \tau^{1/2} + \Lambda \right\} - 1 \right]$$

$$F \cong \frac{6a^2}{\sqrt{\pi}(\alpha+a)^2} \tau^{1/2} - 3 \frac{a}{(\alpha+a)} \tau$$

와 같이 표현된다. 이때,  $\alpha = 0$  이면 이 값은 다음과 같은 ANS5.4 Model 과 정확히 일치됨을 알 수 있다.

$$FGR \cong \frac{6}{\sqrt{\pi}} \tau^{1/2} - 3\tau$$

### Case II : In-Pile FGR

|      | Original   | Transformation  | New G.E.   |
|------|--|---|--|
| G.E. | $\frac{\partial C_v}{\partial t} = \beta + D_v^{eff} \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial C_v}{\partial r} \right)$ | $\frac{\partial u}{\partial t} = D_v^{eff} \frac{\partial^2 u}{\partial r^2} + \beta r$ | $\frac{\partial w}{\partial t} = D_v^{eff} \frac{\partial^2 w}{\partial r^2}$  |
| I.C. | $C_v(r, 0) = 0$  | $\Rightarrow$   | $w(r, 0) = \frac{\beta r^3}{6D_v^{eff}}$   |
| B.C. | $C_v(0, t) = \text{finite}$<br>$\alpha \frac{\partial C_v}{\partial r} \Big _{r=a} - C_v(a, t) = 0$  | $u = r \cdot C_v$<br>$u = w - \frac{\beta r^3}{6D_v^{eff}}$                             | $w(0, t) = 0$<br>$\frac{\alpha}{a} \frac{\partial w}{\partial r} \Big _{r=a} - \frac{\alpha+a}{a^2} w \Big _{r=a}$<br>$+ (a-2\alpha) \frac{\beta a}{6D_v^{eff}} \cong 0$ |

$\tilde{w} = \int_0^\infty e^{-st} w(r, t) dt$  과 같이 Laplace 변환을 하면

$$S \tilde{w} - \frac{\beta r^3}{6D_v^{eff}} = D_v^{eff} \frac{\partial^2 \tilde{w}}{\partial r^2}$$

$$\frac{\alpha}{a} \left( \frac{\partial \tilde{w}}{\partial r} \right)_{r=a} - \frac{\alpha+a}{a^2} \tilde{w}_{r=a} + (a-2\alpha) \frac{\beta a}{6D_v^{eff}} \frac{1}{S} = 0$$

과 같이 표현할 수 있고 이때의 초기조건은  $\tilde{w}(0) = 0$  이다. 일반해는

$$\tilde{w}(r) = A \exp\left(\sqrt{\frac{S}{D}} r\right) + B \exp\left(-\sqrt{\frac{S}{D}} r\right) + \frac{\beta}{6D_v^{eff}} \frac{r^3}{S} + \frac{\beta}{S^2} r$$

경계조건을 적용시키면



$$A = -B = \frac{\beta}{S^2} \left[ \frac{\alpha}{a} \sqrt{\frac{S}{D}} \left( e^{\sqrt{\frac{S}{D}} a} + e^{-\sqrt{\frac{S}{D}} a} \right) - \frac{\alpha + a}{a^2} \left( e^{\sqrt{\frac{S}{D}} a} - e^{-\sqrt{\frac{S}{D}} a} \right) \right]^{-1}$$

따라서 해는

$$\tilde{w}(r) = \frac{\frac{\beta}{S^2} \left( e^{\sqrt{\frac{S}{D}} r} - e^{-\sqrt{\frac{S}{D}} r} \right)}{\frac{\alpha}{a} \sqrt{\frac{S}{D}} \left( e^{\sqrt{\frac{S}{D}} a} + e^{-\sqrt{\frac{S}{D}} a} \right) - \frac{\alpha + a}{a^2} \left( e^{\sqrt{\frac{S}{D}} a} - e^{-\sqrt{\frac{S}{D}} a} \right)} + \frac{\beta}{6D_v^{eff}} \frac{r^3}{S} + \frac{\beta}{S^2} r$$

결정립계에서의 flux 는

$$\begin{aligned} J &= -D_v^{eff} \left( \frac{\partial C_v}{\partial r} \right)_{r=a} \\ \tilde{J} &= -\frac{D_v^{eff}}{a} \left[ \left( \frac{\partial \tilde{w}}{\partial r} \right)_{r=a} - \frac{\tilde{w}}{a} \Big|_{r=a} - \frac{\beta a^2}{3D_v^{eff}} \frac{1}{S} \right] \\ &= -\frac{D_v^{eff}}{a} \frac{\frac{\beta}{S^2} \left\{ \sqrt{\frac{S}{D}} \left( e^{\sqrt{\frac{S}{D}} a} + e^{-\sqrt{\frac{S}{D}} a} \right) - \frac{1}{a} \left( e^{\sqrt{\frac{S}{D}} a} - e^{-\sqrt{\frac{S}{D}} a} \right) \right\}}{\frac{\alpha}{a} \sqrt{\frac{S}{D}} \left( e^{\sqrt{\frac{S}{D}} a} + e^{-\sqrt{\frac{S}{D}} a} \right) - \frac{\alpha + a}{a^2} \left( e^{\sqrt{\frac{S}{D}} a} - e^{-\sqrt{\frac{S}{D}} a} \right)} \\ &= -\frac{\beta D_v^{eff}}{a s^2} \frac{\sqrt{\frac{S}{D}} - \frac{1}{a} \tanh \left( \sqrt{\frac{S}{D}} a \right)}{\frac{\alpha}{a} \sqrt{\frac{S}{D}} - \frac{\alpha + a}{a^2} \tanh \left( \sqrt{\frac{S}{D}} a \right)} \end{aligned}$$

$\tau$  가 작을 때는  $s$  는 커지므로

$\tanh \left( \sqrt{\frac{S}{D}} a \right)$  는 1 값을 갖게되고 따라서

$$\begin{aligned} \tilde{J} &= \frac{\beta D_v^{eff}}{a} \left( \frac{1}{S^2} \frac{1 - a \sqrt{\frac{S}{D}}}{\alpha \sqrt{\frac{S}{D}} - \frac{\alpha + a}{a}} \right) \\ &= \frac{\beta D_v^{eff}}{a} \left[ \frac{\alpha a^4}{D (\alpha + a)^3} \frac{1}{S} + \frac{a^3}{\sqrt{D} (\alpha + a)^2} \frac{1}{S^{3/2}} - \frac{a}{\alpha + a} \frac{1}{S^2} + \frac{\alpha^2 a^5}{D^{3/2} (\alpha + a)^4} \left\{ \frac{1}{\sqrt{S}} - \frac{1}{\sqrt{S} - \frac{a(\alpha + a)}{\alpha}} \right\} \right] \end{aligned}$$

Laplace 역변환을 취하면

$$J = \frac{\beta D_v^{eff}}{a} \left[ \frac{a^3}{\sqrt{D} (\alpha + a)^2} \frac{2}{\sqrt{\pi}} t^{1/2} - \frac{a}{\alpha + a} t + \frac{\alpha a^4}{D (\alpha + a)^3} \left\{ 1 + \exp \left( \frac{D (\alpha + a)^2}{\alpha a} t \right) \operatorname{erfc} \left( \frac{\sqrt{D} (\alpha + a)}{\alpha} \sqrt{t} \right) \right\} \right]$$

Fission Gas Release rate 는

$$F = \frac{4\pi a^2 \int_0^t J dt'}{\frac{4}{3} \pi a^3 \beta t} = \frac{3}{a\beta t} \int_0^t J dt'$$

$$= \frac{3D_v^{eff}}{a^2 t} \int_0^t \left[ \frac{a^3}{\sqrt{D(\alpha+a)^2} \sqrt{\pi}} \frac{2}{\sqrt{\pi}} t^{1/2} - \frac{a}{\alpha+a} t + \frac{a}{D(\alpha+a)^3} \left\{ 1 + \exp\left(\frac{D(\alpha+a)^2}{(\alpha a)^2} t\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{\sqrt{D(\alpha+a)} \sqrt{t}}{\alpha a}\right) \right\} \right]$$

여기서  $z = \frac{\sqrt{D(\alpha+a)} t^{1/2}}{\alpha a}$ 의 치환을 이용하면

$z e^{z^2} \operatorname{erfc} z = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \left( 1 - \frac{1}{2z^2} + \frac{1 \cdot 3}{4z^2} - \frac{1 \cdot 3 \cdot 5}{8z^3} + \dots \right)$ 의 성질을 가지고 있고 또한  $z > 1$  이므로

$$F = \frac{3D_v^{eff}}{a^2 t} \left[ \frac{4}{3\sqrt{\pi}} \frac{a^3}{\sqrt{D_v^{eff}} (\alpha+a)^2} t^{3/2} - \frac{a}{2(\alpha+a)} t^2 + \frac{\alpha a^4}{D_v^{eff} (\alpha+a)^3} \left\{ t + \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{\alpha^2 a^2}{D(\alpha+a)^2} \left( \frac{\alpha+a}{\alpha a} t^{1/2} \right) \right\} \right]$$

$$= \frac{4}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{a}{\alpha+a} \right)^2 \left( \frac{D_v^{eff} t}{a^2} \right)^{1/2} - \frac{3}{2} \left( \frac{a}{\alpha+a} \right) \left( \frac{D_v^{eff} t}{a^2} \right) + 3 \left( \frac{a}{\alpha+a} \right)^3 \left( \frac{\alpha}{a} \right) - \frac{6}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{a}{\alpha+a} \right)^4 \left( \frac{\alpha}{a} \right)^2 \left( \frac{D_v^{eff} t}{a^2} \right)^{-1/2}$$

$\alpha \ll a$  이므로

$$F \cong \frac{4}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{a}{\alpha+a} \right)^2 \left( \frac{D_v^{eff} t}{a^2} \right)^{1/2} - \frac{3}{2} \left( \frac{a}{\alpha+a} \right) \left( \frac{D_v^{eff} t}{a^2} \right)$$

만일  $\alpha = 0$ 의 값을 가지면 이 식은 In-Pile에서의 Booth model과 같은 값을 가진다는 것을 알 수 있다.  $\tau = \frac{D_v^{eff} t}{a^2}$ 이라고 하면

$$F = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \tau^{1/2} - \frac{3}{2} \tau.$$

#### 4. 결과 및 논의

기존의 모델들과 본 연구에서 개발한 모델들의 특징을 요약하면 다음과 같다.

| Model                 | B.C.  | Time        | Feature                                      |
|-----------------------|---|-------------|--|
| Speight( or Turnbull) | $C_v(a, t) = C_{gb} = \frac{b\lambda N_{gb}}{2D}$   | independent | 1 <sup>st</sup> kind                         |
| Forsberg & Massih     | $C_v(a, t) = C_{gb}(t) = \frac{b(t)N_{gb}(t)}{2D(t)} \lambda$                               | dependent   | 1 <sup>st</sup> kind<br>3 unknown parameters |
| This Research         | $C_v(a, t) = \bar{C}_{gb}(t) = \alpha \left( \frac{\partial C_v}{\partial r} \right)_{R=a}$ | dependent   | 3 <sup>rd</sup> kind                         |

기존의 Speight와 Turnbull의 모델은 결정립계에서의 경계조건을 일정한 값으로 고정하고 식을 유도하였으나 실제 핵분열 생성물은 시간에 많은 영향을 받기 때문에 Forsberg & Massih는 시간의 변화에 따른 결정립계에서의 경계조건을 시간의 함수로 생각하였다. 그러나 시간에 따른 3가지 인수값을 알 수 없기 때문에 해석적인 해를 구하기 어려운 단점이 있다.

그러나 본 연구에서는 핵분열 생성물 방출 거동을 결정립과 결정립계에서의 두 단계로 나누어 결정립계에서의 기본방정식으로부터 시간에 따른 결정립계 경계조건을 유도하였다. 이 경계조건을 바탕으로 핵분열 생성물 방출율을 얻어 ANS5.4의 Booth 모델과 비교하여 새로

정의한  $\alpha = \frac{2D_v^{eff}}{\beta_0^2 w D_{gb}^{eff}}$  의 변화에 따라 그림 4와 같이 유사한 거동을 예측할 수 있었다.

이때  $\alpha$ 값은  $\alpha = \frac{2}{\beta_0^2 w}$  이 1에 가까우므로 대략  $\alpha = \frac{D_v^{eff}}{D_{gb}^{eff}}$  인 것을 알 수 있으나 온도와 연소도의 함수로서 구해야할 값이다.

## 5. 결론

최근 핵연료의 장주기·고연소 추세에 따라 고연소도에서 핵분열 생성물 방출기구에 대한 철저한 이해와 이에 따른 정확한 독자모델 개발의 필요성이 대두되고 있는 시점에서 본 연구에서는 미국 NRC의 감사용 계산 코드인 FRAPCON-3를 포함하여 최근까지 개발된 고연소용 핵분열 생성물의 역학적 확산 모델을 이론적으로 비교 검토하고 그 결과에 바탕을 두고 2단계 방출 개념을 수학적으로 평가한 고연소 핵연료용 해석 모델을 개발하였다. 이 모델은 기본적으로 핵분열 생성 기체의 확산 과정을 실제 노내 상황과 같이 기지 내 확산과 입계면 내 확산 방출의 두 단계로 나누어 정의하고 이들 확산 계수의 비를 인자로 하여 확산 방정식을 해석적으로 풀어 낸 모델이다. 평가 결과 이 모델은 고연소 핵연료에서의 가속적 기체 방출을 잘 모사하고 있을 뿐만 아니라 수학적 formulation에서 적용한 대로 입계면에서의 기체 방출이 매우 클 경우 ANS5.4 모델과 동일하고 그렇지 않을 경우 예상대로 방출이 크게 지연될 수 있다는 것을 보여주고 있다.

결론적으로 좀더 철저한 자료 검증이 필요하겠지만, 이 모델을 활용할 경우 적어도 (Modified) ANS5.4와 FRAPCON-3의 Forsberg & Massih 모델의 단점을 극복하고 또 하나의 중요한 물리적 값을 도출해냄으로써 고연소 핵연료에서의 핵분열 생성기체 방출을 좀더 용이하게 평가할 수 있을 것으로 판단된다.

이 모델은 추후 rim effect와 같은 국부적인 영향과 과도 상태 평가가 가능토록 추가적으로 개발될 예정이다.

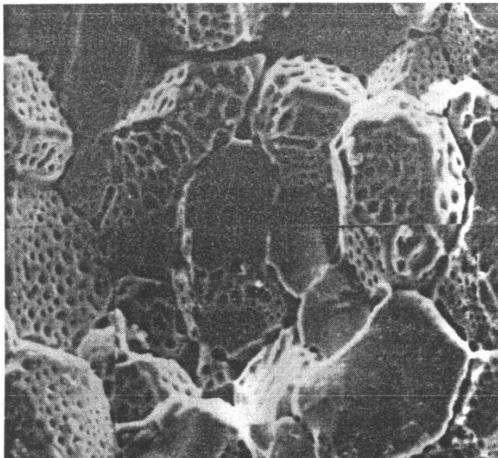
## 참고문헌

1. A.H. Booth, A Method of Calculating Fission Gas Diffusion from UO<sub>2</sub> Fuel, CRDC-721 (1957)
2. R.A. Lorenz, ANS5.4 Fission Gas Release Model I: Noble Gases at High Temperature, ANS Topical Meeting on LWR Fuel Performance (April, 1979) 321
3. L.D. Noble, ANS5.4 Fission Gas Release Model III: Low Temperature Release, ANS Topical Meeting on LWR Fuel Performance (April, 1979) 336
4. C.E. Beyer and R.O. Meyer, Semi-empirical Model for Radioactive Fission Gas Release From UO<sub>2</sub>, Trans. Am. Nuc. Soc. 23 (1976) 172
5. M. V. Speight, A Calculation on the Migration of Fission Gas in Material Exhibiting Precipitation and Re-solution of Gas Atoms Under Irradiation, Nucl. Sci. Eng. 37 (1969) 180-185
6. 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
7. K.Forsberg and A.R. Massih, Diffusion Theory of Fission Gas Migration in Irradiation Nuclear Fuel UO<sub>2</sub>, J. Nucl. Mater. 135 (1985) 140

표 1 Comparison of the parameters used at each model

|                          | Activation Energy  | Burnup Factor            | Resolution, $b\lambda$  | $D_0/a^2$                    |
|--------------------------|--------------------|--------------------------|---|------------------------------|
| ANS5.4                   | 72,300 cal/mol     | $100^{(Bu/28000)}$       |   | 0.61/sec *                   |
| Modified ANS5.4          | 49,700 cal/mol     | $100^{(Bu-25000)/28000}$ |   | $22.1 \times 10^{-4}$ /sec * |
| Farsberg & Massih        | 45,470 cal/mol     |                          | $1.84 \times 10^{-14}$  | $8.56 \times 10^{-3}$ /sec * |
| Modified Farsberg-Massih | 57,742 cal/mol     | $100^{(Bu-21000)/35000}$ | $1.47 \times 10^{-12}$  | $8.56 \times 10^{-3}$ /sec * |
| KWU                      | 31,792 cal/mol *** |                          |   |                              |
| Modified KWU (CARO-D5.5) | 27,818 cal/mol *** |                          |   |                              |
| Turnbull                 |                    |                          | $b : 10^{-6} \sim 10^{-4}$ **<br>$\lambda : 10^{-8} \sim 10^{-5}$ |                              |

\* NUREG/CR-6534 , \*\* Dawling & White, J. Nucl. Mater. 110(1981)37, \*\*\* KWU B 412/89/e422



a) Scanning electron micrographs of fracture Surfaces at UO<sub>2</sub> fuel irradiated to burnups of 0.28% FIMA at temperature of 1460°C



b) SEM of the fracture surface of Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-doped UO<sub>2</sub>, Of grain size 70 micron, irradiated to 0.28% FIMA burnup at 1460°C showing the formation of snake-like pores created by the coalescence of lenticular grain Face gas bubbles

그림 1. Scanning electron micrographs of fracture surface

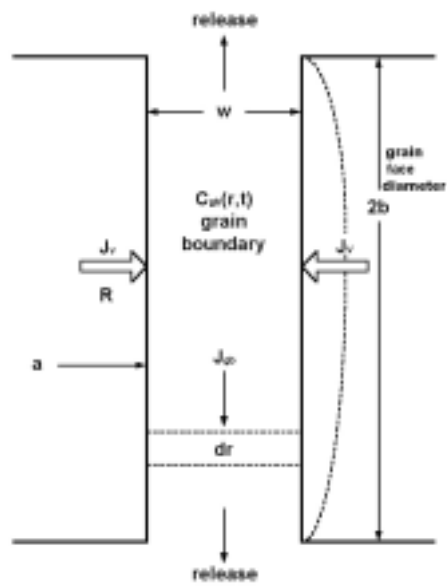
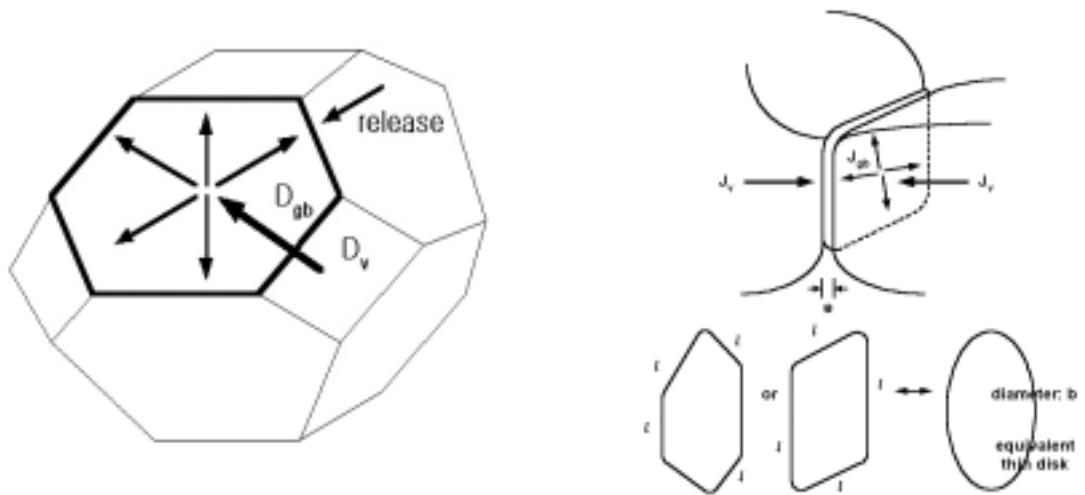


그림 2. 핵분열 생성기체의 방출 과정

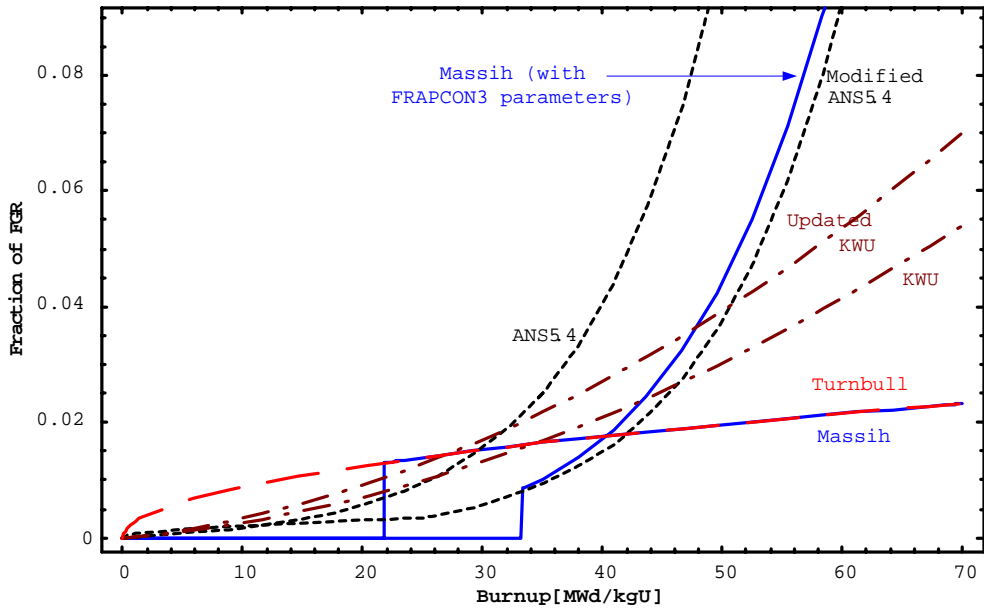


그림 3. Fraction of FGR vs. burnup of each model at 1200°C

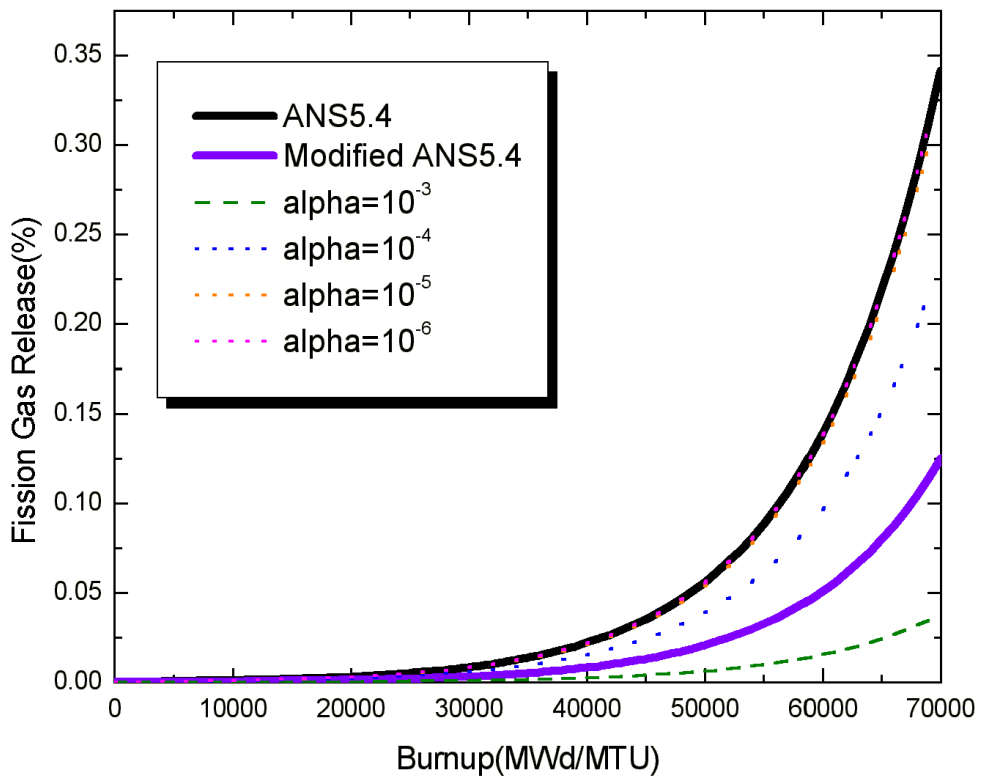


그림 4. Fission Gas Release Fraction vs. Burnup at 1200°C for the comparison of the original ANS5.4 model and the results of this research