2001 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

해석적 고연소 핵분열 생성물 방출 모델 개발

An Analytical Model on Fission Gas Release for High Burn-up Nuclear Fuel

김용수, 김영훈, 이동욱

한양대학교
서울특별시 성동구 행당동 17

이찬복, 방제건, 김대호, 정연호

한국원자력연구소
대전직할시 유성구 덕진동 150

요 약

미국 NRC 의 감사용 계산 코드인 FRAPCON3 를 포함하여 최근까지 개발된 고연소용 핵분열 생성물의 역학적 확산 모델을 이론적으로 비교 검토하고 그 결과에 바탕을 두고 2 단계 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 formulation 에서 적용한 대로 입계면에서의 기체 방출이 매우 클 경우 ANS5.4 모델과 동일하고 그렇지 않을 경우 예상대로 방출이 크게 지연될 수 있다는 것을 보여주고 있다. 이 모델은 추후 rim effect 와 같은 국부적인 영향과 과도 상태 평가가 가능토록 추가적으로 개발될 예정이다.

Abstract

Mechanistic diffusion models for high burn-up fission gas release prediction, including FRAPCON-3, have been thoroughly reviewed and examined in this study. Then, based on the review, an analytical 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 take local high burn-up effect such as rim-effect and transient release into consideration.

1. 서 론

원자력 발전소 운전시 핵분열 반응에 의해 생성되는 핵연료내 핵분열 생성물의 거동은 핵연료의 열적.기계적 성능에 중대한 영향을 미친다. 실제 많은 원자력 발전소의 운전 지침은 이들 핵분열 생성물의 과다 방출을 막기 위한 조처에서 출발하고 있다. 실제로 장시간의 원전 운전시 발생할 수 밖에 없는 핵연료 피복관의 파손에 따라 핵분열 생성물이 방출될 경우 발전소 내 1 차 냉각수의 방사선 오염을 증가시키게 되는데 이 오염이 기준치를 넘을 경우 출력 감소 운전을 초래할 수 있고 그 오염정도가 심각할 경우 파손 핵연료의 대체를 위해 발전소 운전 중지 등의 사태 등도 야기시킬 수 있다.

또한 부식 반응성이 높은 핵분열 생성물의 방출은 핵연료 피복관의 파손을 촉진시키게 되어 생성물 방출, 피복관 파손, 생성물 방출 가속 등 일련의 현상을 유도할 수 있다. 이처럼 핵분열 생성물 방출 거동에 관한 연구의 중요성에도 불구하고 국내의 연구는 독자적인 검증 자료 없이 기존의 수입된 외국 전산코드를 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 분산이 큰데다 현재 전환된 장주기, 고연소용 핵연료의 경우 중성자 조사에 의한 장시간 조사로 인해 핵연료의 미세구조가 크게 달라져 안전 운전을 위한 운전 여유도 잠식이 심각해 질 수 있는데 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 이러한 고연소 핵분열 생성물 방출 기구에 대한 독자적 모델 개발의 일환으로 핵분열 생성물의 기지 내 확산과 입계면 확산을 수학적으로 모사하는 해석적 고연소 핵분열 생성물 방출 모델을 개발하였다.

2. 기존 핵분열 생성물 방출 모델 분석

핵연료 내 핵분열 생성 기체의 방출에 대한 최초의 해석적/역학적 모델은 Booth 의 모델로 이 모델에서는 핵연료 결정을 임의의 구라 가정하고 구 표면에 핵분열 생성물이 확산되어 나왔을 때 모두 방출한다는 가정에서 출발하여 확산방정식을 해석적으로 구하였다 [1]. 이후 이 모델은 여러 in-pile 자료의 평가를 통해 확산 계수를 도출하고 ANS5.4 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.

$$F = 4\sqrt{\frac{t}{p}} - \frac{3}{2}t \qquad \text{when } p^2 t < 1$$

$$F = 1 - \frac{6}{t}\sum_{n=1}^{\infty}\left\{\frac{1}{(np)^4}[1-\exp(-n^2 p^2 t)]\right\} \qquad \text{when } p^2 t > 1$$

여기서, $t = Dt/a^2 = D't$, $D' = \left|(D_0/a^2)\exp(-Q/RT)\right| \times 100^{Bu/28000}$, Q : 72,300 cal/mol, R : 1.987 cal/mol-^{0}K, D_0/a^2 : 0.61 sec^{-1}, Bu 는 국부적 연소도이다.

위 모델에서 사용된 , 활성화 에너지 (Q) 값은 400 60,000 MWd/MTU 연소도 영역의 경수로와 고속증식로 실험결과에 의한 값이다. 실제 이 모델에서 D 와 a^2 은 분리할 수 없고, 고연소 핵연료에서 버블 형성 등이 고려되지 않아 저연소도 핵분열 생성물 방출에만 적당함에도 불구하고 현재까지도 NRC 가 고연소 핵연료 성능 감사 계산용으로 채택하고 있을 정도로 활용성이 높은 모델이다. 그러나 ANS5.4 에서 채택된 diffusivity 값이 너무 보수적이라는 지적과 축적된 in-pile 자료값을 근거로 modified ANS5.4 모델이 선보이게 되었다 [4]. 이 모델에서 유효 확산 계수의 값이 22.1x10^{-4} sec 로 수정되었고 온도에 의한 활성화 에너지 값도 72,300 cal/mole 에서 49,700 cal/mole 로 조정되었다.

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

$$\frac{\partial C}{\partial t} = b + D\nabla^2 C - gC + bm$$
$$\frac{\partial m}{\partial t} = gC - bm$$

여기서 C 는 국부적 핵분열 기체 평균 농도, m 은 버블 내에 있는 기체의 양, 그리고 g 는 핵분열 기체가 버블에 포획될 확률, b 는 버블 내에서 핵연료 기지 내로 방출되는 확률이다. 위 연립미분방정식을 풀고 유효확산계수, D_{eff}=bD/(b+g),를 도입하여 Booth 해와 같은 핵분열 생성물 방출비를 제안하였다. 그러나 그는 열역학적으로 결정립계가 perfect sink 로서 작용한다 하더라도 결정립계 단위 면적에 존재하는 핵분열 기체의 양, N_{gb}, 이 존재한다면 결정립계 단위 부피에 존재하는 핵분열 기체의 농도, C_{gb}=bλN_{gb}/2D,를 최종 핵분열 생성물 방출비에 반영하면 아래와 같이 될 것이라고 제안하고 있다.

$$F - bN_{gb} \cong F_0\left(\frac{C_m - C_{gb}}{C_m}\right) = F_0\{1-(b+g)\,l N_{gb}/2Dbt\}$$

여기서 $C_m = bbt/(b+g)$ 이다.

Turnbull 모델[6]은 기존의 방출 역학(perfect sink)에 의해서 핵분열 기체가 방출되지 않고 결정립계 버블 내에 일정 양의 농도가 쌓이고 그 양이 포화농도를 넘어서게 되면 방출된다는 개념으로 위 모델들과 같은 지배 방적식에 Speight 가 제안한 결정립계에 존재하는 농도를 일정하다고 가정하여 다음과 같은 해를 도출하였다.

$$F = 4\sqrt{\frac{t}{p}} - \frac{3}{2}t + \frac{C_0 - C_{gb}}{bt}\left[6\sqrt{\frac{t}{p}} - 3t\right] \qquad \text{when } p^2 t < 1$$
$$F = 1 - \frac{6}{bt}\sum_{n=1}^{\infty}\left\{\frac{ba^2}{(np)^4} - \frac{C_0 - C_{gb}}{(np)^2}\right\}\left\{1 - \exp(-n^2 p^2 t)\right]\right\} \qquad \text{when } p^2 t > 1$$

위에서 $C_0=C_{gb}$ 이면 Booth 해와 같게 된다.

Forsberg & Massih 모델[7] 역시 위에서 기술한 결정립계 경계면에 핵분열 생성기체가 존재한다는 개념을 사용하고 있지만 Turnbull 과는 달리 그 양이 시간에 따라 변하는 양으로 가정하고 문제를 접근하였다. 구체적인 지배방정식은 아래와 같고 β(t)는 핵분열 생성기체의 생성률을 나타낸다.

$$\frac{\partial C(r,t)}{\partial t} = \hat{a}(t) + D\nabla^2 C(r,t) \qquad IC{:}\ C(r,0) = C_0$$
$$BC{:}\ C(a,t) = b(t)\,l N_{gb}(t)/2D(t) = C_{gb},\quad \partial C/\partial t(0,t) = 0$$

Booth 는 핵분열 생성기체가 결정립계의 경계면에 도달하는 즉시 방출된다는 가정을 하였지만 Massih 는 경계면 핵분열 생성기체 버블내의 기체농도가 포화 농도 이상이 되어야 방출되는데 방출되는 양은 그때까지 쌓인 모든 핵분열 기체가 모두 방출된다고 하였다. 따라서 연료의 단위 부피당 방출된 핵분열 생성기체의 양,F_R,은 다음과 같다.

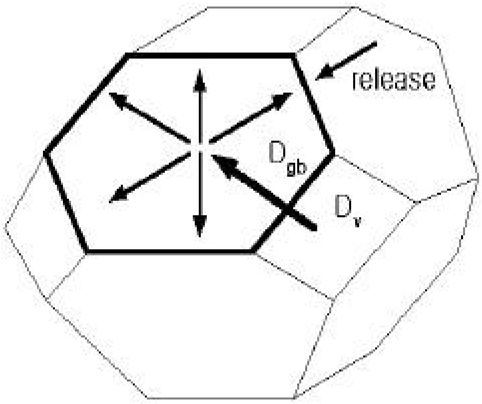
$$F_R = fG_s$$

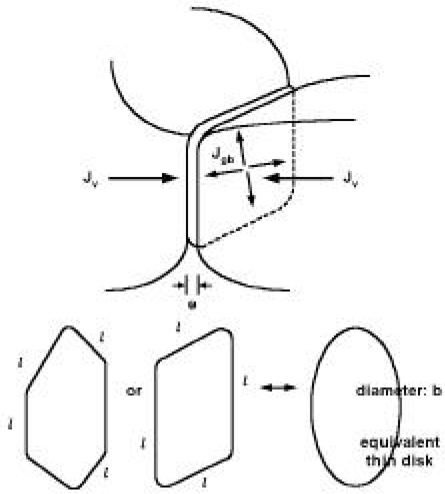
여기서, Gs : 포화시 결정립 경계면내의 기체밀도
f : 핵분열 생성기체의 방출율

이 모델은 NRC 의 감사 계산용으로 개발된 FRAPCON-III 에서 채택되고 있는 모델이다.

3. 해석적 고연소 핵분열 생성물 방출 모델의 Formulation

3.1 Formulation





<u>G.E: Two Simultaneous PDEs</u>

$$\frac{\partial C_v}{\partial t} = b + D_v \nabla^2 C_v$$

I.C.: $C_v(R,0) = 0$

B.C.: $C_v(0,t) =$ finite

$C_v(a,t) = \bar{C}_{gb}(t)$

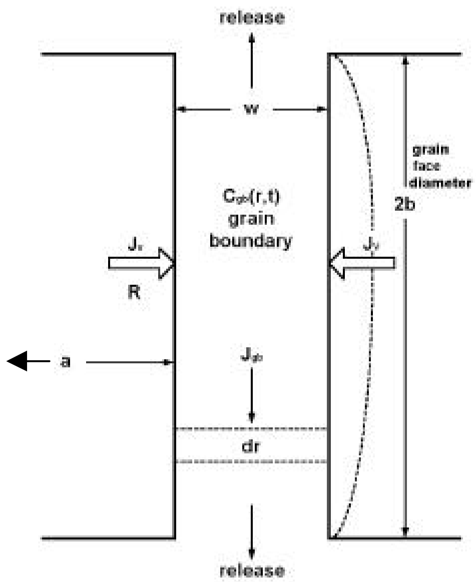
$$w\frac{\partial C_{gb}}{\partial t} = wD_{gb}\nabla^2 C_{gb} - 2D_v\left(\frac{\partial C_v}{\partial R}\right)_{R=a}$$

I.C. : $C_{gb}(r,0) = 0$

B.C.: $C_{gb}(0,t) =$ finite

$C_{gb}(b,t) = 0$

❑ Governing (balance) equation in the grain boundary:



$$wD_{gb}\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial C_{gb}}{\partial r}\right)-2D_v\left(\frac{\partial C_v}{\partial R}\right)_{R=a}=w\frac{\partial C_{gb}}{\partial t}$$

Since $D_v\left(\frac{\partial C_v}{\partial R}\right)_{R=a}$ **is a function of time,**

let $D_v\left(\frac{\partial C_v}{\partial R}\right)_{R=a}=g(t)$ **Then G.E. becomes**

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

I.C.: $C_{gb}(r,0) = 0$
B.C.: $C_{gb}(0,t) =$ **finite**
$C_{gb}(b,t) = 0$

Rewritten with appropriate constants, a = D_{gb} **and** $k=-wD_{gb}/2$

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

On applying Green's function to the G.E.

$$C_{gb}(r,t)=\frac{a}{k}\int_{t=0}^{t}dt\int_{r'=0}^{b}r'G(r,t\,|r',t)dr'$$

The desired Green's function is obtained:

$$G(r,t\,|r',t)=\frac{2}{b^2}\sum_{m=1}^{\infty}\exp\left[-ab_m^2(t-t)\right]\frac{J_0(b_m r)}{J_1^2(b_m b)}J_0(b_m r')$$

Therefore,

$$C_{gb}(r,t)=\frac{2a}{kb^2}\sum_{m=1}^{\infty}\exp\left[-ab_m^2 t\right]\frac{J_0(b_m r)}{J_1^2(b_m b)}\int_{t=0}^{t}\exp\left[ab_m^2 t\right]g(t)dt\int_{r'=0}^{b}r'J_0(b_m r')dr'$$

Since, $\int_0^b r'J_0(b_m r')dr'=\frac{1}{b_m}bJ_1(b_m b)$

$$C_{gb}(r,t) = \frac{2a}{kb}\sum_{m=1}^{\infty}\exp\left[-ab_m^2 t\right]\frac{J_0(b_m r)}{b_m J_1(b_m b)}\int_0^t \exp\left[ab_m^2 t\right]g(t)dt$$

$$= -\frac{4}{wb}\sum_{m=1}^{\infty}\frac{J_0(b_m r)}{b_m J_1(b_m b)}\int_0^t \exp\left[ab_m^2(t-t)\right]g(t)dt$$

$$= -\frac{4}{wb}\sum_{m=1}^{\infty}\frac{J_0(b_m r)}{b_m J_1(b_m b)}\left\{1 - ab_m^2\, t + \frac{a^2 b_m^4}{2!}t^2 - \frac{a^3 b_m^6}{3!}t^3 + \Lambda\right\}\int_0^t g(t)dt$$

$$\cong \frac{-4J_0(b_0 r)}{wbb_0 J_1(b_0 b)}\int_0^t g(t)dt = \frac{-4J_0(b_0 r)}{wbb_0 J_1(b_0 b)}\int_0^t D_v\left(\frac{\partial C_v}{\partial R}\right)_{R=a} dt$$

☛ **Fission Gas Release Fraction** $\equiv 4p\, a^2 \int_0^t J_v\,|_{R=a}\, dt' \Big/ \frac{4}{3}p\, a^3\, \overline{C_v}(t)$

$$\int_0^t \exp\left(ab_m^2(t-t)\right)g(t)dt = \int_0^t\left\{1 + ab_m^2(t-t) + \frac{a^2 b_m^4}{2!}(t-t)^2 + \frac{a^3 b_m^6}{3!}(t-t)^3 + \Lambda\right\}g(t)dt$$

$$= \left\{1 - ab_m^2\, t + \frac{a^2 b_m^4}{2!}t^2 - \frac{a^3 b_m^6}{3!}t^3 + \Lambda\right\}\int_0^t g(t)dt$$

Therefore, FGR is defined in this approach

$$\text{FGR} \equiv \frac{2p\, bw\int_0^t J_{gb}\Big|_{r=b} dt'}{p\, b^2 w\overline{C}_{gb}(t)}\cdot\frac{p\, b^2\, w\,\overline{C}_{gb}(t)}{\frac{4}{3}p\, a^3\,\overline{C}_v(t)} = 2p\, bw\int_0^t J_{gb}\,|_{r=a}\, dt' \Big/ \frac{4}{3}p\, a^3\,\overline{C}_v(t)$$

Since, $\frac{\partial}{\partial r}\{J_0(b_0 r)\} = -b_0 J_1(b_0 r)$

$$2p\, bw\int_0^t J_{gb}dt' = 2p\, bwD_{gb}\int_0^t \frac{\partial C_{gb}}{\partial r}dt'$$

$$= 2p\, bwD_{gb}\frac{\partial}{\partial r}\left[-\frac{4J_0(b_0 r)}{wbb_0 J_1(b_0 b)}\int_0^t\int_0^{t'} g(t)dt\, dt'\right]$$

$$= 8p\, D_{gb}\int_0^t\int_0^{t'} g(t)dt\, dt'$$

Therefore, **FGR** $\equiv 8p\, D_{gb}\int_0^t\int_0^{t'} J_v\Big|_{R=a} dt\, dt' \Big/ \frac{4}{3}p\, a^3\overline{C}_v(t)$

☛FGR in single step model: FGR $\equiv 4p\,a^2 \int_0^t J_v\big|_{R=a}\, dt' \Big/ \frac{4}{3} p\, a^3 \overline{C}_v(t)$

In Quasi-Steady State

$$\frac{2p\,bw\,J_{gb}\big|_{r=b}}{2p\,b^2 J_v\big|_{R=a}} = \frac{wD_{gb}^{eff}}{bD_v^{eff}} \frac{\left.\frac{\partial C_{gb}}{\partial r}\right|_{r=b}}{\left.\frac{\partial C_v}{\partial R}\right|_{R=a}} \cong 1$$

Since $C_{gb}(r,t) \cong -\frac{4J_0(b_0 r)}{wbb_0 J_1(b_0 b)} \int_0^t g(t)dt$ and

$$\int r' J_0(b_0 r')dr' = \frac{1}{b_0} r J_1(b_0 r) \text{ and } \frac{\partial}{\partial r}\{J_0(b_0 r)\} = -b_0 J_0(b_0 r),$$

$$\overline{C}_{gb}(t) = \frac{2}{b^2}\int_0^b C_{gb}(r,t) r dr = -\frac{8}{wb^2 b_0^2} \left.\frac{J_1(b_0 r)}{J_1(b_0 b)}\right|_{r=b} \int_0^t g(t)dt \quad \text{and}$$

$$w\left.\frac{\partial C_{gb}}{\partial r}\right|_{r=b} = \frac{4}{b} \left.\frac{J_1(b_0 r)}{J_1(b_0 b)}\right|_{r=b} \int_0^t g(t)dt$$

Hence, $w\left.\frac{\partial C_{gb}}{\partial r}\right|_{r=b} = \frac{wbb_0^2}{2} \overline{C}_{gb}(t)$

The Quasi-steady state relation can be rewritten:

$$wD_{gb}^{eff} \left.\frac{\partial C_{gb}}{\partial r}\right|_{r=b} = \frac{wbb_0^2 D_{gb}^{eff}}{2} \overline{C}_{gb}(t) = bD_{gb}^{eff} \left.\frac{\partial C_v}{\partial R}\right|_{R=a}$$

Therefore, $\overline{C}_{gb}(t) = \frac{2}{wb_0^2} \frac{D_v^{eff}}{D_{gb}^{eff}} \left.\frac{\partial C_v}{\partial R}\right|_{R=a} \cong a \left.\frac{\partial C_v}{\partial R}\right|_{R=a}$ where, $a = \frac{D_v^{eff}}{wD_{gb}^{eff}}$

On returning to G.E., first kind B.C. at R=a must be replaced with third kind B.C.: $C_v(a,t) = \overline{C}_{gb}(t) = a \left.\frac{\partial C_v}{\partial R}\right|_{R=a}$

That is,

$$\alpha \left.\frac{\partial C_v}{\partial R}\right|_{r=a} - C_v(a,t) = 0$$

Finally, two stage diffusion F.G.R. model is obtained:

$$\frac{\partial C_v}{\partial t} = \beta + D_v \nabla^2 C \qquad \text{Where,} \qquad \beta = y\dot{F}$$

I.C.: $C_v(R,0) = 0$

B.C.: $C_v(0,t) =$ finite

$$\alpha \left.\frac{\partial C_v}{\partial r}\right|_{R=a} - C_v(a,t) = 0$$

❑ This model treats the boundary condition at R=a as a function of time in more conceptually-improved manner than F&M's approach.

❑ When α goes to zero, this model converts to original ANS5.4 model

3.2 SOLUTION OF NEW MODEL

P.I.E. F.G.R.

$$\frac{\partial C_v}{\partial t} = D_v^{eff} \frac{1}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}\left(r^2 \frac{\partial C}{\partial r}\right)$$

I.C.: $C_v(R,0) = 0$
B.C.: $C_v(0,t) = \text{finite}$

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

Transformation $\Downarrow$

$h = r/a$
$t = D_v^{eff} t / a^2$
$u = h(C/C_0)$

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \frac{\partial^2 u}{\partial h^2}$$

$$u(h,0) = h, \quad u(0,t) = 0$$

$$a\left\{\frac{1}{h}\left(\frac{\partial u}{\partial h}\right) - \frac{1}{h^2}u(h,t)\right\}_{h=1} - u(1,t)$$

$$= a\left(\frac{\partial C_v}{\partial r}\right)_{h=1} - 2u(1,t) = 0$$

Taking the Laplace transform, $\tilde{u} = \int_0^\infty e^{-st}\; u(h,t)dt$ of the transformed G.E. and B.C.

$$s\,\tilde{u} - h = \frac{d^2\tilde{u}}{dh^2} \qquad \text{with B.C.:} \quad \tilde{u}(0) = 0, \qquad a\left(\frac{\partial \tilde{u}}{\partial h}\right)_{h=1} - 2\tilde{u}(1) = 0$$

General solution of $\tilde{u}$ is

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

On applying the B.C

$$\tilde{u}(h) = \frac{(2-a)}{s}\left\{\frac{e^{\sqrt{s}h} - e^{-\sqrt{s}h}}{a\sqrt{s}\left(e^{\sqrt{s}} + e^{-\sqrt{s}}\right) - 2\left(e^{\sqrt{s}} - e^{-\sqrt{s}}\right)}\right\} + \frac{h}{s}$$

The flux of gas atoms released from the surface of the equivalent sphere is

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

The Laplace transform of this flux is

$$\tilde{J} = -\frac{D_v^{eff} C_0}{a}\left[\left(\frac{d\tilde{u}}{dh}\right)_{h=1} - \tilde{u}(1)\right]$$

$$= \frac{D_v^{eff} C_0}{a}\left[\frac{a-2}{s}\left\{\frac{\sqrt{s}(e^{\sqrt{s}} + e^{-\sqrt{s}}) - (e^{\sqrt{s}} - e^{-\sqrt{s}})}{a\sqrt{s}(e^{\sqrt{s}} + e^{-\sqrt{s}}) - 2(e^{\sqrt{s}} - e^{-\sqrt{s}})}\right\}\right]$$

$$= \frac{D_v^{eff} C_0}{a}\left[\frac{a-2}{s}\left\{\frac{\sqrt{s} - \tanh\sqrt{s}}{a\sqrt{s} - 2\tanh\sqrt{s}}\right\}\right]$$

When α is small, the Laplace transform variable s is large, then $\tanh\sqrt{s}$ becomes unity. Therefore,

$$\tilde{J} = \frac{D_v^{eff} C_0}{a}\cdot\frac{a-2}{a}\cdot\frac{\sqrt{s}-1}{s\left(\sqrt{s}-2/a\right)} = \frac{D_v^{eff} C_0}{a}\cdot\frac{(2-a)}{2}\cdot\left\{(1-\frac{a}{2})\frac{1}{\sqrt{s}} - (1-\frac{a}{2})\frac{1}{\sqrt{s}-2/a} - \frac{1}{s}\right\}$$

On taking the inverse transform

$$J = \frac{(2-a)D_v^{eff} C_0}{2a}\left[\frac{(1-a/2)}{\sqrt{pt}} - (1-\frac{a}{2})\left\{\frac{1}{\sqrt{pt}} - \frac{2}{a}e^{4t/a^2} erfc\left(\frac{2}{a}\sqrt{t}\right)\right\} - 1\right]$$

$$= \frac{(2-a)D_v^{eff} C_0}{2a}\left[\frac{(2-a)}{a}e^{\frac{4}{a^2}t} erfc\left(\frac{2}{a}\sqrt{t}\right) - 1\right]$$

Therefore, FGR is as follows:

$$\text{FGR} \equiv \frac{4p\, a^2 \int_0^t J dt'}{(4/3)p\, a^3 C_0} = \frac{3}{aC_0}\int_0^t J dt' = \frac{3}{aC_0}\left(\frac{a^2}{D}\right)\int_0^t J dt'$$

$$= \frac{3(2-a)}{2}\left[\frac{2-a}{a}\int_0^t e^{\frac{4}{a^2}t} erfc\left(\frac{2}{a}\sqrt{t}\right)dt' - t\right]$$

$$\left[\begin{array}{l} \int_0^t e^{\frac{4}{a^2}t} erfc\left(\frac{2}{a}\sqrt{t}\right)dt' \\ \qquad Let \quad \frac{2}{a}\sqrt{t} = z \leftrightarrow dt = \frac{a^2}{2} z dz \\ = \frac{a^2}{2}\int_0^z z e^{z^2} erfc(z) dz' \\ \qquad z e^{z^2} erfc(z) = \frac{1}{\sqrt{p}}\left(1 - \frac{1}{2z^2} + \frac{1\cdot 3}{2z^2} - \frac{1\cdot 3\cdot 5}{2z^2} + \Lambda\right) \\ = \frac{a^2}{2\sqrt{p}}\left\{z + \frac{1}{2z} - \frac{1}{4}\frac{1}{z^3} + \frac{1\cdot 3}{8z^5} - \Lambda\right\} \end{array}\right]$$

$$= \frac{3(2-a)}{2}\left[\frac{2-a}{a}\cdot\frac{a^2}{2\sqrt{p}}\left\{\frac{2}{a}t^{1/2} + \Lambda\right\} - 1\right]$$

$$\cong \frac{3(2-a)^2}{2\sqrt{p}}t^{1/2} - \frac{3(2-a)}{2}t$$

☛ ANS5.4 Model (PIE Case) FGR $\equiv \frac{6}{\sqrt{p}}t^{1/2} - 3t$

<u>In-Pile F.G.R.</u>

$$\frac{\partial C}{\partial t} = b + D_v^{eff}\frac{1}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}\left(r^2\frac{\partial C_v}{\partial r}\right) \quad \underset{u = rC_v}{\hat{U}} \quad \frac{\partial u}{\partial t} = D_v^{eff}\frac{\partial^2 u}{\partial r^2} + b\, r$$

$$\frac{\partial w}{\partial t} = D_v^{eff}\frac{\partial^2 w}{\partial r^2} \qquad u = w - \frac{b\, r^3}{6D_v^{eff}}$$

4. 결과 및 논의

- ❑ $a = D_v^{eff} / w D_{gb}^{eff}$; Another parameter to be found based on DB.

  $a(\mathrm{T}, \mathrm{Bu}) \leftrightarrow D_v^{eff}$ and D_{gb}^{eff}

- ❑ Boundary Conditions: New Approach vs. Speight (or Turnbull)

New Approach: 3rd kind

$$C_v(a,t) = \overline{C}_{gb}(t) = a\left(\frac{\partial C_v}{\partial r}\right)_{R=a} \Leftrightarrow a\left(\frac{\partial C_v}{\partial r}\right)_{R=a} - C_v(a,t) = 0 \qquad \text{(time-dependent!)}$$

Speight (or Turnbull): 1st kind

$$C_v(a,t) = b\,l\,N_{gb} / 2D = C_{gb} \qquad \text{(time-independent)}$$

Forsberg & Massih: 1st kind

$$C_v(a,t) = b(t)\,l\,N_{gb}(t) / 2D(t)$$

(time-dependent, however, 3 unknown parameters)

5. 결 론

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 NRC 의 감사용 계산 코드인 FRAPCON3 를 포함하여 최근까지 개발된 고연소용 핵분열 생성물의 역학적 확산 모델을 이론적으로 비교 검토하고 그 결과에 바탕을 두고 2 단계 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 formulation 에서 적용한 대로 입계면에서의 기체 방출이 매우 클 경우 ANS5.4 모델과 동일하고 그렇지 않을 경우 예상대로 방출이 크게 지연될 수 있다는 것을 보여주고 있다.

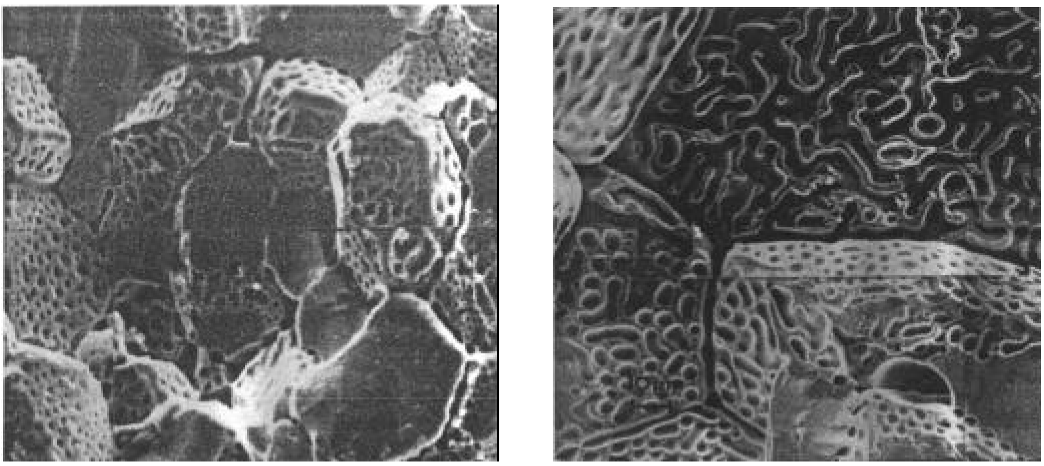
이 모델은 추후 rim effect 와 같은 국부적인 영향과 과도 상태 평가가 가능토록 추가적으로 개발될 예정이다.

참고문헌

1. A.H. Booth, A Method of Calculating Fission Gas Diffusion from UO2 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 UO2, 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 UO2, *J. Nucl. Mater.* **135** (1985) 140

표 1 Comparsion of the parameters used at each model

Model	Activation energy (cal/mol)	Burnup factor	Resolution, $b\lambda$	D_0/a^2 (sec^{-1})
ANS5.4	72,300	$100^{Bu-28000}$		61
Modified ANS5.4	49,700	$100^{(Bu-25000)/21000}$		22.1E-4
Forsberg & Massih	45,470		1.84E-14	8.56E-3
Modified Forsberg & Massih	57,742	$100^{(Bu-21000)/35000}$	1.47E-12	8.56E-3
KWU	31,792			
Modified KWU	27,818			
Turnbull			b: E-6~E-4	
			λ: E-8~E-5	



a) Scanning electron micrographs of fracture Surfaces at UO2 fuel irradiated to burnups of 0.28% FIMA at temperature of 1460^0C

b) SEM of the fracture surface of Cr2O3-doped UO2, Of grain size 70 micron, irradiated to 0.28% FIMA burnup at 1460^0C showing the formation of snake-like pores created by the coalesence of lenticular grain Face gas bubbles

그림 1. Scanning electron micrographs of fracture surface

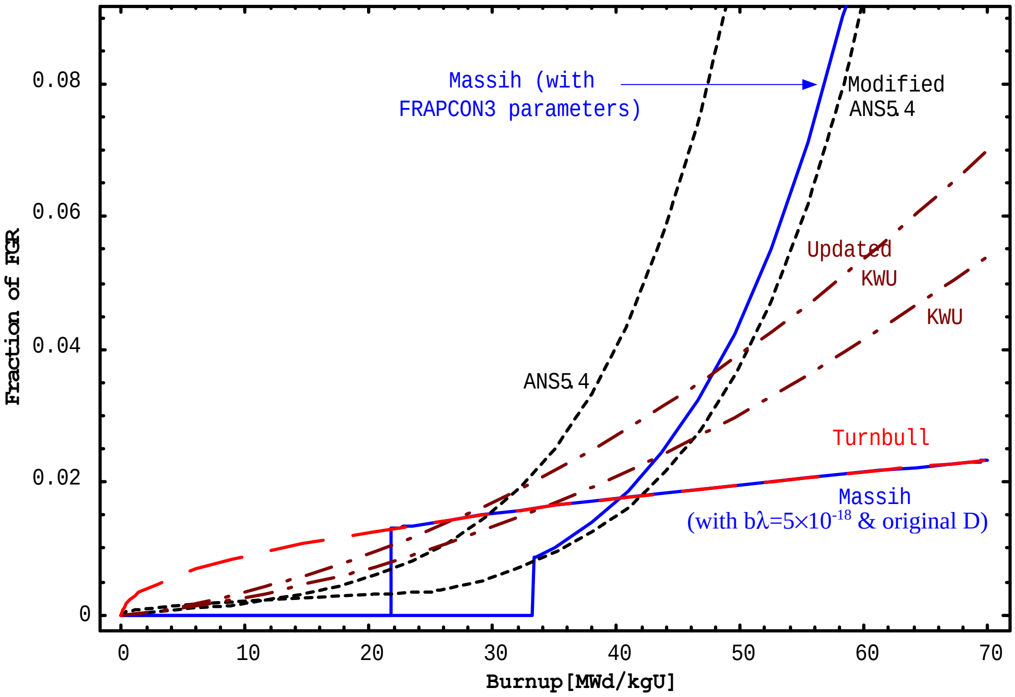


그림 2. Fraction of FGR vs. burnup of each model at 1200^0C

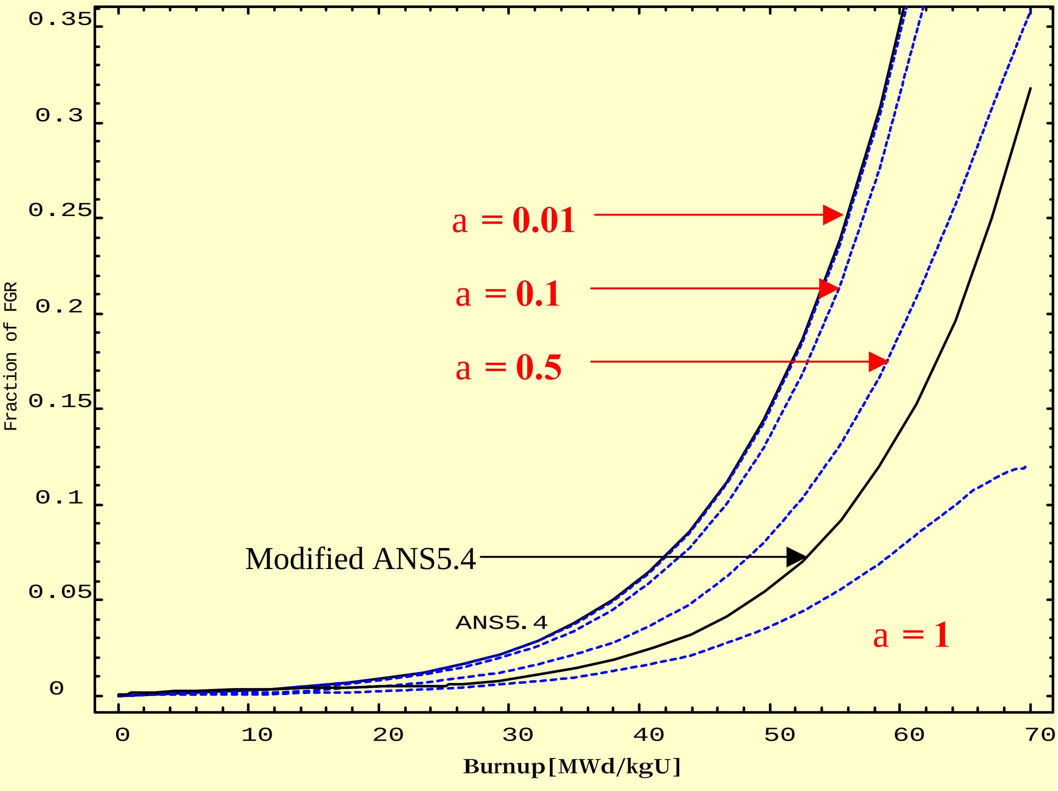


그림 3. 해석적 모델과 ANS5.4 **모델 비교**

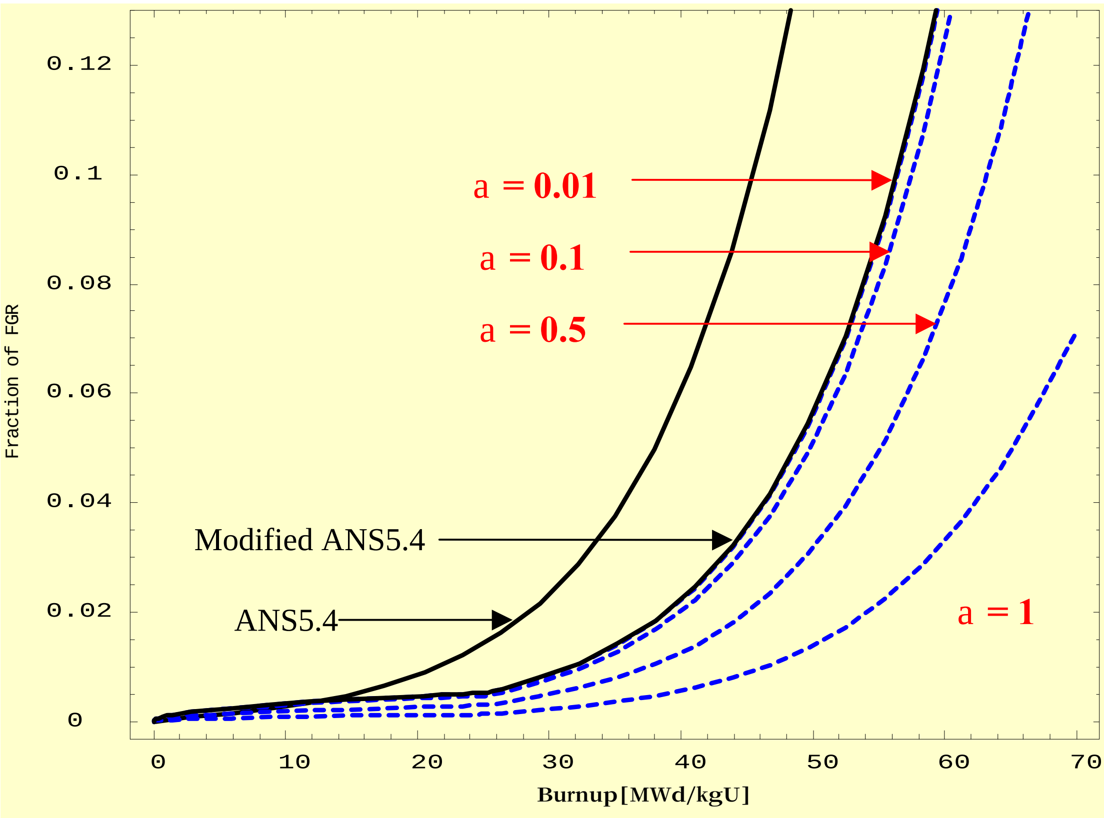


그림 4. 해석적 모델과 Modified ANS5.4 **모델 비교**