'98 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

감마선 동위원소 핵종비를 이용한 PWR 사용후핵연료의 연소도 결정

박형종, 박대규, 박광준, 서기석, 엄성호, 민덕기, 노성기
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

ORIGEN-S 전산코드로 계산된 가압경수로(PWR)사용후핵연료 내에 존재하는 방사성핵종비 $^{134}Cs/^{137}Cs$ 및 $^{154}Eu/^{137}Cs$ 를 감마선 분광실험으로 측정한 값과 비교하여 핵연료의 연소도를 결정하였다. 고리 1호기 및 2호기 사용후핵연료봉에 대한 감마선 분광실험을 한국원자력연구소 조사재시험시설(IMEF)과 조사후시험시설(PIEF)의 시험기기 및 장치를 이용하여 수행하고 이 결과로 부터 $^{134}Cs/^{137}Cs$ 와 $^{154}Eu/^{137}Cs$ 의 핵종비를 측정하였다. 이와 별도로 사용후핵연료의 연소도, 냉각시간, 초기농축도등에 따른 $^{134}Cs/^{137}Cs$ 와 $^{154}Eu/^{137}Cs$의 핵종비를 ORIGEN-S 코드로 계산을 하였으며, 이 핵종비와 연소도 사이의 관계를 회귀분석하여 2차 다항식 함수로 유도하였다. 이 관계식과 감마선 분광실험으로 측정한 $^{134}Cs/^{137}Cs$와 $^{154}Eu/^{137}Cs$ 의 핵종비를 이용하여 각각의 연소도를 결정할 수 있었다.

1. 서 론

원자로에서 연소된 핵연료 속에 포함되어 있는 핵분열생성핵종들의 양은 그 핵연료의 초기 농축도, 조사이력, 냉각시간 및 연소도와 밀접하게 관련되어 있다. 따라서 다른 인자는 알려져 있고 연소도만을 모르는 경우 이들 핵분열생성핵종의 양을 측정하므로써 사용후핵연료의 연소도를 구할 수 있다. 이 핵분열생성핵종들 중 일부는 감마선 방출핵종이면서 연소도에 따라 선형적으로 (^{137}Cs의 경우) 또는 제곱으로 (^{134}Cs 또는 ^{154}Eu의 경우) 변하므로 이들 양을 측정하면 핵연료의 연소도를 알 수 있게 된다[1,2,3]. 이와 같이 연소도를 결정하는데 사용할 수 있는 핵분열생성핵종을 지표핵종이라고 한다.

그러나 지표핵종의 양을 구하는데 필요한 절대 검출효율을 실험적으로 구하는 것은 매우 어려운 일이다. 따라서 본 연구에서는 지표핵종들의 비 $^{134}Cs/^{137}Cs$ 또는 $^{154}Eu/^{137}Cs$가 연소도에 선형적으로 의존한다는 사실을 이용했다. 실험에서 측정된 핵종비는 ORIGEN-S 코드에서 예측하는 연소도에 따른 핵종비와 비교되었다. 그 결과 실험에서 얻은 $^{134}Cs/^{137}Cs$ 와 $^{154}Eu/^{137}Cs$ 의 핵종비로부터 측정 위치에 대한 사용후핵연료의 연소도를 구할 수 있었다.

2. 이론적 배경

사용후핵연료의 연소도는 특정한 핵분열 생성물들의 원자수비로 부터 구해질 수 있다. ^{137}Cs는 ^{235}U과 ^{239}Pu 으로부터의 핵분열 수율이 거의 비슷하므로 (각각 6.32 와 6.74 %) 사용후핵연료 속에 있는 ^{137}Cs의 양은 연소도에 거의 선형적으로 의존한다. 그러나 ^{137}Cs의 양을 감마선 측정등의 비파괴적 방법으로 알아내는 것은 감마선 측정의 절대 연소도를 알아야 하므로 실험적으로 어려움이 많다. 반면, ^{134}Cs 는 우라늄이나 플루토늄 핵분열에 의해 생성된 ^{133}Cs의 $^{133}Cs(n,\gamma)$ 반응에 의해 주로 만들어진다. 따라서 핵연료 속에 있는 ^{134}Cs의 양은 연소도의 제곱에 근사적으로 비례하며 핵종비 $^{134}Cs/^{137}Cs$는 연소도에도 근사적으로 비례한다. 마찬가지로 ^{154}Eu 도 1차 핵분열생성 핵종인 ^{153}Eu의 $^{153}Eu(n,\gamma)$ 반응에 의해 주로 만들어지므로 핵종비 $^{154}Eu/^{137}Cs$ 도 ~30 GWd/tU 까지는 연소도에 선형적으로 의존한다. 이들 핵종비는 감마선 분광시험으로 쉽게 측정할 수 있으므로 ^{137}Cs와 같은 단일 핵종의 양을 이용한 방법보다 편리하다. 이때 주어진 노심 형태, 연소이력, 초기농축도, 연소도등에 따라 생성되는 이들 지표핵종의 생성량은 ORIGEN-S 전산코드 계산을 이용하였다.

3. 연소도 결정 방법

감마선 측정과 동위원소 상관비 분석방법에 의한 핵연료 집합체의 연소도는 다음과 같은 여러 단계를 거쳐 측정하였다.

- o ORIGEN-S 코드를 이용한 데이터 베이스 작성
  - 핵연료 형태별, 초기 농축도별, 연소도별 지표핵종 생성량을 ORIGEN-S 코드로 계산
  - ORIGEN-S 계산 결과를 외국의 검증시험 결과(benchmarking)를 이용하여 보정
- o 핵종비 $^{134}Cs/^{137}Cs$, $^{154}Eu/^{137}Cs$ 를 연소도의 함수로 회귀분석
- o 사용후핵연료 감마선 스펙트럼 분석: 동위원소비 측정
- o 사용후핵연료의 연소도 결정

가. ORIGEN-S 코드를 이용한 데이터 베이스 작성

(1) ORIGEN-S 코드 계산

ORIGEN-S 컴퓨터 코드는 시스템 해석을 위한 SCALE-4.3 시스템 코드의 한 기능 모듈이다[4]. 본 연구에서는 초기 농축도를 2.5에서 5.0%까지 0.1%씩 변화시키고, 연소도를 10 에서 60 GWd/MtU 까지 2 GWd/MtU씩 변화시키고 발전소에서 제공한 연소이력을 입력자료로 하였을 때 생성되는 지표핵종들의 양을 ORIGEN-S 코드로 계산하였다.

(2) ORIGEN-S 코드 벤치마킹 보정

ORIGEN-S 코드의 계산결과를 보정하기 위하여 미국의 M. D. DeHart 의 가압경수로 사용후핵연료 검증시험(benchmarking) 결과를 이용하였다[5]. 이 결과에 따르면 ORIGEN-S 코드로 계산된 ^{134}Cs와 ^{154}Eu의 생성량은 계산값에 각각 0.9814 ± 0.007와 1.0370 ± 0.057의 보정인자를 곱해

주어야 일치하는 것으로 나타났다. 즉 ^{134}Cs의 생성량은 약 1.9% 과대평가 하는 것으로, ^{154}Eu의 생성량은 약 3.7% 과소평가 하는 것으로 나타났다. 따라서 본 연구에서도 그들 보정인자를 ORIGEN-S 계산값에 적용하였다.

나. 핵종비를 연소도의 함수로 회귀분석

주어진 핵연료 형태, 초기 농축도, 냉각시간에서 ORIGEN-S 코드로 계산된 지표핵종들의 핵종비는 연소도에 다음과 같은 2차 다항함수로 회귀분석되었다.

$$\begin{aligned} \text{핵종비 } {}^{134}Cs/{}^{137}Cs &= (P_1 + P_2 \cdot \text{연소도} + P_3 \cdot \text{연소도}^2) \\ \text{핵종비 } {}^{154}Eu/{}^{137}Cs &= (Q_1 + Q_2 \cdot \text{연소도} + Q_3 \cdot \text{연소도}^2) \end{aligned} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots ①$$

여기서, P_1, P_2, P_3는 ORIGEN-S코드로 계산한 핵종비 $^{134}Cs/^{137}Cs$를 연소도에 회귀분석하여 얻은 계수이고, Q_1, Q_2, Q_3는 ORIGEN-S코드로 계산한 핵종비 $^{154}Eu/^{137}Cs$를 연소도에 회귀분석 하여 얻은 계수들이다. 그림 1과 2는 가압경수로 사용후핵연료에 있어서 연소도에 따른 핵종비 $^{134}Cs/^{137}Cs$ 및 $^{154}Eu/^{137}Cs$를 회귀분석한 결과를 보여준다. 이들 결과는 핵종비가 연소도의 2차 함수로 잘 회귀분석될 수 있음을 나타낸다.

다. 사용후핵연료 감마선 스펙트럼 분석: 동위원소비 측정

감마선 스펙트럼에서 각각의 피이크의 면적(감마선 카운트 수)은 방사성 시료에 포함되어 있는 핵종의 양과, 시준기의 기하학적 배치를 포함한 검출장치의 검출효율 등에 의해 결정된다. 감마선 스펙트럼 피이크와 방사성핵종의 양 사이에는 다음과 같은 관계식을 만족한다.

$$S = N\left(\frac{\ln 2}{\tau}\right) \Gamma\, \varepsilon(E) \quad \cdots\cdots\cdots ②$$

여기서, S는 매초당 카운트 수, N은 현재의 방사성핵종 원자수, τ는 반감기, Γ는 매 붕괴당 특정에너지의 감마선 방출확률, $\varepsilon(E)$는 검출시스템의 검출효율로서 감마선의 선원내 흡수, 시준기(collimator)의 검출각 등 검출장치의 기하배치 및 검출기의 검출효율 등을 모두 포함한 것이며 감마선의 에너지에 의존하는 양이다. 검출시스템의 검출효율 $\varepsilon(E)$를 알고 있다면 피이크면적(S)을 측정하여 ②식으로부터 원자수 N을 구할 수 있다. 여기서 $\varepsilon(E)$는 어떤 하나의 핵종으로부터 얻어진 다중 피이크들이 각각 일정한 비율(방출확률, Γ)로 생성되기 때문에 획득된 스펙트럼으로부터 각각의 피이크들을 면적비교하여 알아낼 수 있다. 상대검출효율측정을 위해서는 좋은 피이크를 만드는 적당한 핵종을 선정해야 하는데 본 연구에서는 ^{134}Cs와 ^{154}Eu를 사용했다.

라. 사용후핵연료의 연소도 결정

감마스캐닝 실험으로부터 각 측정위치에서 지표핵종들의 비 $^{134}Cs/^{137}Cs$ 와 $^{154}Eu/^{137}Cs$를 측정하고 ①식을 이용해서 연소도를 구했다. ①식은 연소도에 대한 2차 방정식이므로 두 개의 해가 존재하는데 이 중 한 개의 해는 비현실적으로 큰 값이 된다. ①식에서는 핵종비 $^{134}Cs/^{137}Cs$를 써서도 연소도를 구할 수 있고 핵종비 $^{154}Eu/^{137}Cs$로부터도 연소도를 구할 수 있다. 이들 중 어느 값을 연소도로 채택할 것인가는 사용후핵연료의 특성(냉각시간, 연소이력등)과 실험의 편리성등을 고려해야 한다.

4. 실험

가. 시험 대상 핵연료

연소도 측정 실험은 두 번에 걸쳐 행해졌다. 실험에 대한 개요는 표 1에 나타내었다. IMEF 핫셀 실험에 사용된 시편은 조사후시험시설(PIEF)에 있는 PWR사용후핵연료(고유번호 J14E11)로부터 만들었다. 이 연료봉의 추정평균연소도는 약 39 GWd/MtU 이며 1989년 1월에 원자로에서 인출(Discharge)되어 측정시점까지의 냉각기간은 약 8.5년이 되었다. 이 핵연료 전체를 10 ㎝ 간격으로 잘라 이들 36개의 절편을 빈 CANDU형 연료봉 튜브에 넣어 밀봉하였고 각각의 시편에 대해 고유번호를 부여하였는데, 각각은 A1 ~ A9, B1 ~ B9, C1 ~ C9, D1 ~ D9으로 하였다. 이 중에서 본 실험에서 측정에 쓰인 핵연료절편은 연료하단부위에서부터 12개인 A1 ~ A9, B1 ~ B3 이다. 이들 12개의 시편은 모두 화학분석을 위한 소량의 시편이 채취되어 현재 분석 중이며 나중에 본 실험결과와 화학분석결과를 비교할 수 있게 하였다. PIEF 핫셀 실험은 IMEF실험을 보완하기 위해 1997년9월22일에서 10월14일동안에 행해졌다. 이 연료봉의 추정평균연소도는 약 36 GWd/MtU로 1992년5월29일 인출되어 감마스캐닝실험시점까지의 냉각시간은 약 5.3년이었다.

표 1. 연소도 결정 실험대상 사용후핵연료봉 특성

실험 대상	실험장소	ID 연소주기	초기우라늄농축도 발전소 공표연소도 냉각시간	실험 기간
고리1호기 연료봉 절편	IMEF 핫셀	J14E11 7/8/9	3.2wt% 39 GWd/MtU 8.5년	1997년 6월-7월
고리2호기 연료봉	PIEF 핫셀	J44M5 7/8	3.5wt% 36 GWd/MtU 5.3년	1997년 9월-10월

나. 시험 장치 및 감마선 스펙트럼 측정

IMEF 핫셀실험에서 감마선 스펙트럼의 측정은 각 펠렛 중앙부위에 대하여 4,800초씩 하였다. 실제는 각 펠렛의 측정방향에 따른 변화를 알기 위하여 중앙위치에서 15도씩 회전하면서 각 방향마다 200초씩 측정하였는데 각 방향에 따른 감마선세기는 2% 정도 차이를 보였다[6]. PIEF 핫셀 실험에서는 핵연료봉의 밑에서부터 2cm씩 이동하면서 30분씩 총 65개 지점에서 스펙트럼을 얻었다. IMEF 와 PIEF 핫셀실험에서 사용된 각각의 장비는 다음과 같다.

(1) IMEF 핫셀 실험

- 감마선 검출기 : HPGe검출기(효율15%, 액체질소 냉각방식) @ORTEC
- 벤치 구동 : 프로그램화된 자동구동 시스템
- 집속기 : 2 mm(폭) x 40 mm(길이) x 150 mm(두께) 수평슬릿
- 검출신호 분석프로그램 : Maestro II 및 Gammavision

(2) PIEF 핫셀 실험

-감마선 검출기 : HPGe검출기(효율10%, 액체질소 냉각방식) @Canverra

-벤치 구동 : 자동구동 시스템

-collimator : 0.5 mm(폭) 수평슬릿

-검출신호 분석프로그램 : FORTRAN

5. 실험 결과 및 결론

그림 3은 IMEF 핫셀 실험에서 B1절편에 대한 장시간 감마선 스펙트럼 측정 결과를 보여준다. ^{154}Eu 스펙트럼을 분석하여 얻은 감마선 검출효율은 그림 4에 나타내었다. 이 검출효율과 감마 에너지와의 관계를 최소자승법으로 피팅하여 다음과 같은 1차식을 얻었다.

$$\epsilon = (1.6841 \pm 0.0169) - (5.404 \pm 0.185) \times 10^{-4} E$$

이 검출효율을 이용해서 모두 72개 펠렛에 대한 $^{134}Cs/^{137}Cs$ 및 $^{154}Eu/^{137}Cs$ 의 핵종비를 구하였다. 그 결과를 ORIGEN-S 계산 결과와 비교하여 각 측정위치에서의 연소도를 결정할 수 있었다. 그림 5는 각 측정위치별 연소도를 보여주고 있다. 여기서 $^{154}Eu/^{137}Cs$ 핵종비에 의한 연소도 값과 연료봉 전체의 총 감마선 세기분포곡선을 이용해서 구한 연료봉의 평균 연소도는 42.7±2.5 GWd/MtU 이었다. 이 결과는 발전소 공표값 ~39 GWd/MtU와 5.9%의 상대오차 범위내에서 일치하였다.

마찬가지 방법으로 구한 J44M5의 연소도는 35.2±2.1 GWd/MtU 이었는데 이 값은 발전소 공표값 36 GWd/MtU과 잘 일치한다.

참고문헌

1. J.R. Phillips, T.R. Bement, K. Kaieda, E.G. Media, "Nondestructive verification of relative burn-up values and cooling times of irradiated MTR fuel elements", LA-7949-MS, LANL, USA (1979).
2. 이영길, 엄성호, 박광준, 홍권표, 노성기, "핵분열생성핵종 Cs-137 감마선의 측정에 의한 PWR 사용후핵연료 연소도평가", 한국원자력학회지, vol. 25, No. 2, p. 178 (1992).
3. 노성기, "핵연료물질측정", KAERI-NEMAC/TR-14/93, 한국원자력연구소 (1993).
4. O.W.Hermann, R.M.Westfall, "ORIGEN-S: Scale System Module to Calculate Fuel Depletion, Actinide Transmutation, Fission Product Buid-up and Decay, and Associated Radiation Source Terms," NUREG/CR/-0200 Rev 5 volume 2, section F7, ORNL, USA (1995).
5. M.D. DeHart, O.W. Hermann, and C.V. Parks, "Validation of a Method for Prediction of Isotopic Concentrations in Burnup Credit Applications", *The 5th International Conference on Nuclear Criticality Safety*, New Maxico, USA (1994).
6. 박대규외, "감마스캐닝에 의한 사용후PWR핵연료의 핵종비 $^{134}Cs/^{137}Cs$ 및 $^{154}Eu/^{137}Cs$ 측정", KAERI/TR-925/97, 한국원자력연구소 (1997).

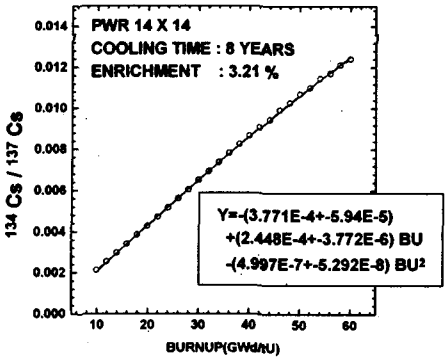

그림 1. ORIGEN-S 코드로 계산된
핵종비 $^{134}Cs/^{137}Cs$

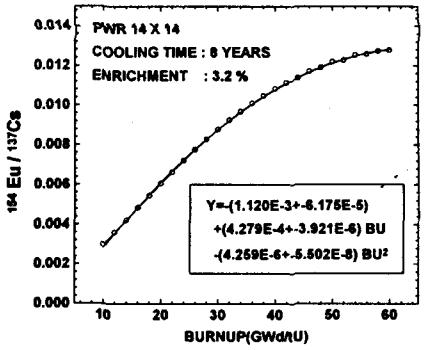

그림 2. ORIGEN-S 코드로 계산된
핵종비 $^{154}Eu/^{137}Cs$

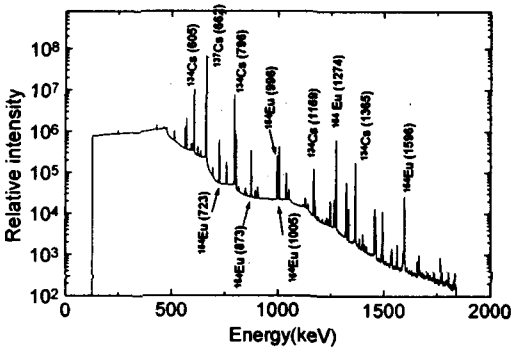

그림 3. B1절편에 대한 10만초 측정 스펙트럼

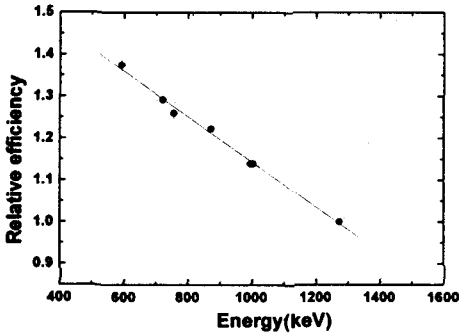

그림 4. ^{154}Eu 피이크들로부터 얻은 상대검출효율

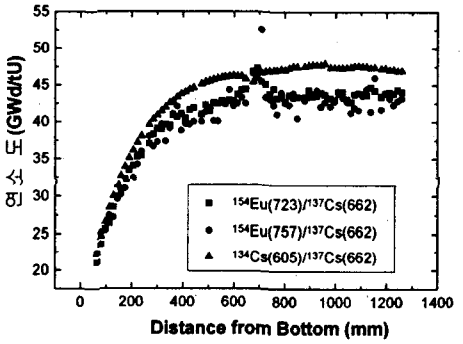

그림 5. J14E11의 연소도

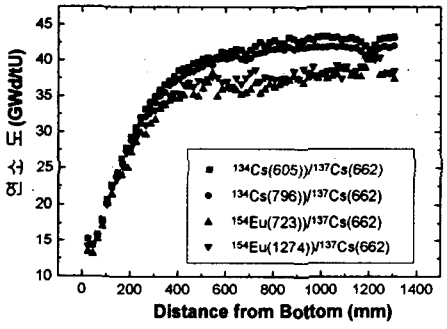

그림 6. J44M5의 연소도