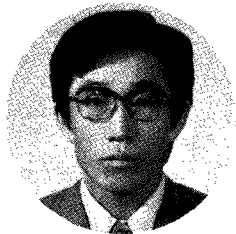


輕水爐의 核燃料被覆材缺陷評價

Evaluation of Failed Fuel Detection in PWR



姜熙東 (韓國에너지研·應用核物理研究室)

安全上의 理由로 運轉中인 原子爐에서 一次 冷却材내에 含有되어 있는 核分裂生成物의 放射能에 上限値를 設定하여 規制하고 있다. 核燃料被覆材에 缺陷이 發生되면 核燃料棒內에서 生成된 核分裂生成物이 一次冷却材로 流出되어 一次系를 汚染시킴으로서 周邊機器를 損傷시키고 環境汚染 및 作業從事者의 放射線障害를 초래하며 廢기물의 量을 增加시킨다.

따라서 核燃料被覆材의 缺陷을 適期에 評價하여 이들의 效果를 最少限으로 할 수 있는 對策을 樹立하고 또한 核燃料再裝填戰略을 마련한다는 點으로 보아 經濟的인 側面에서 뿐만 아니라 倫理的인 側面에서도 바람직하다고 보겠다.

核燃料의 破損檢出은 일반적으로 一次冷却材에 含有되어 있는 核分裂生成物의 放射能을 測定하여 評價하고 있다. 그러나 冷却材에 含有되어 있는 重要放射能源은

1. N^{16} 에 의한 γ -線 ($T_{1/2} = 7.2 \text{ sec}$)
2. 腐蝕生成物에 의한 γ -線
3. 冷却材內의 不純物의 放射化에 따른 γ -線
4. 核分裂生成物에 의한 γ -線
5. N^{17} 에 의한 中性子

6. 核分裂生成物의 붕괴에 따른 中性子 등으로 核分裂生成物에 의한 것은 단지 4項과 6項에만 관계되기 때문에 缺陷核燃料의 狀態를 正確하게 評價하는 데는 어려움이 따르게 된다.

輕水爐의 核燃料被覆材의 破損檢出 方法에는 運轉中일 때엔 γ -線分光法, Delayed neutron 測定法 및 침전법등이 이용되고 있으며, 原子爐 정지기간에는 Probe를 이용하는 여러가지 방법과 Sipping 技術에 의한 檢出法이 주로 이용되고 있다. 여기에서는 운전중인 원자로의 핵연료피복재의 결함평가방법을 현재까지 시도되어 온 연구결과에 따라 소개하도록 하고 원자로 정지시와 사고조건에서의 결함평가방법에 대해서는 다음 기회에 소개코자 한다.

I. 核分裂生成物의 流出機構

1. 核分裂生成物의 形成

U^{235} 의 核分裂에 의한 核分裂生成物의 種類와 物理的인 特性은 數 많이 研究發表되었으며 이 중 가장 폭넓게 이용할 수 있는 資料로는 Meek에 의해 900여개의 참고문헌으로부터 자료를 편집한 NEDO報告書¹⁾와 原子爐에서 發生되는 核種에 대해 방대하게 다루고 있는 ORIGEN

電算코드를 들 수 있다.³⁾

특히 ORIGEN코드는 461種의 核分裂生成物, 246種의 放射化生成物 및 82種의 천이우란원소의 농도를 時間의 함수로 計算할 수 있게 되어 있다. 이렇게 많은 核分裂生成物중 核燃料의 缺陷評價에 利用되는 核種은 불과 20여개 미만으로 重要核種의 붕괴과정과 Cumulative yield는 表1에서 보는 바와 같다.

2. UO₂로 부터 核分裂生成物の 流出

核燃料로부터 核分裂生成物の 流出은 核燃料의 溫度, 密度, 生成率, 燃燒率, 出力의 分布 등에 影響을 받게 된다. 이중 核燃料의 溫度가 流出現象을 가장 민감하게 影響을 주고 있기 때문에 온도에 따라 流出모델을 淸급하는 것이 편리하다.

가. 低溫($\theta < 900^\circ\text{C}$)에서의 流出

i) 反跳(Recoil) 現象

核分裂이 核燃料表面으로 부터 核分裂生成物の 平均自由行程(5~8 μm)의 數倍以內에서 일 어날 때 核分裂生成物이 Gap으로 직접 튀어 나오는 現象이다.

單位時間에 流出되는 i 核種의 數는

$$R_{\text{recoil}} = \frac{1}{4} B_i r \frac{S}{V} \text{로}$$

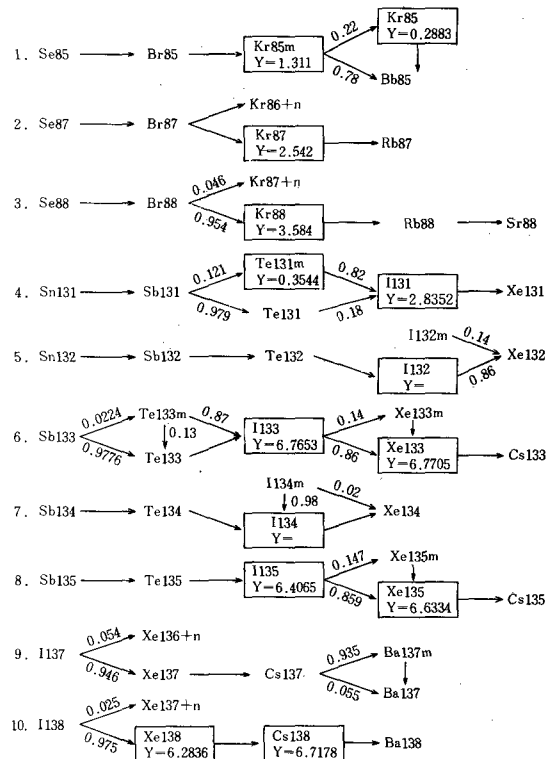
로 되며 B_i 는 生成率(원자/sec), S 및 V 는 각각 核燃料의 表面積(cm^2) 및 體積(cm^3)이며 r 은 平均自由行程(cm)이다. 참고로 Xe 및 I에 대해서는 각각 $r_{\text{Xe}} = 5 \times 10^{-4} \text{cm}$, $r_{\text{I}} = 8 \times 10^{-4} \text{cm}$ 정도이다.^{3,4)}

反跳現象에 의해 流出된 核分裂生成物은 아직 까지 充分한 에너지를 가지고 있어 核燃料被覆材와 충돌하여 固定되므로 Gap에서의 流出現象을 다룰 때는 고려대상에서 제외하는 경우도 있다.

2) Knock-out 現象

核燃料表面에서 核分裂生成物이 튀어 나올 때 核燃料의 일부 덩어리(평균 UO₂분자 2,000개 정도)를 떼어내는 현상으로 이 덩어리내에는 상

〈表1〉 DECAY CHAINS OF FISSION PRODUCTS



당한 核分裂生成物이 포함되어 있다.^{5,6)}

이 現象에 의해 流出되는 i 核種은

$$R_{\text{ko}} = \frac{1}{2} \nu f N r S$$

로 되며 여기서 ν 는 덩어리의 體積(cm^3), f 는 核分裂率(fission/ $\text{s} \cdot \text{cm}^2$), N 는 單位體積當 i 核種의 數(原子/ cm^3)이다.

여기에서 방출되는 덩어리의 體積은 r 이 7 μm 일 때 $1.7 \times 10^{-20} \text{cm}^3$ ⁷⁾ 또는 $9 \times 10^{-21} \text{cm}^3$ ⁸⁾ 정도로서 Hairion이 제기하고 있는 평형상태에서의 UO₂원자가 400~1,000개 정도라는 값과 일치하고 있다.⁹⁾

위에서 본 反跳現象이나 Knock-out 現象은 溫度에 無關한 量으로 두 現象이 核燃料表面에서 복합적으로 일어나게 된다. ANS.5.4 Working group은 이 영역에서 기존의 實驗結果들로부터 安定元素가스와 Kr⁸⁵에 대해 綜合的인

流出모델을 제시하고 있다.⁹⁾

나. 正常溫度 ($900^{\circ}\text{C} < \theta < 1,800^{\circ}\text{C}$)에서의 流出核分裂生成物の 流出이 가장 민감하게 영향을 받고 있는 溫度領域으로 現象구명의 特徵을 보면 대체로 擴散모델, 熱모델, 微細組織에 의한 모델 등으로 區分할 수 있다.

1) 擴散모델

UO_2 燃料內에서 生成된 가스狀態의 核分裂生成物 流出現象을 燃料內에서 核分裂生成物の 生成, 붕괴, 跳走等에 대한 平衡式과 Fick의 法則을 利用한 擴散方程式으로 解析하고 있으며 解析方式에 따라 여러가지 모델로 분류할 수 있다.

먼저 Booth 모델은 核燃料의 실제구조를 "Sphere equivalent"의 理想的인 構造로 代置하여 UO_2 가 特定半徑을 갖는 結晶球의 組合으로 가정하여 擴散方程式을 解析하고 있다.¹¹⁾

한편 Booth 모델을 放射性가스에 용이하게 적용할 수 있도록 球의 半徑에 特定한 값을 부여하지 않고 Apparent diffusion coefficient ($D' = D/a_2$)를 導入하여 擴散方程式의 答을 구한후 확산계수를 實驗的으로 결정하도록 하는 확산계수의 실험모델¹²⁾도 있다.

위의 Booth 모델이나 실험모델은 널리 이용되고 있는 모델이기는 하나 실제 이용에는 몇 가지 문제점이 있다. 즉,

- 평형상태에서 안정동위원소의 유출율이 두 모델 모두 100%로 되어 있으나 실제 實驗結果는 항상 이보다 적으며

- 유출율이 붕괴상수의 제곱근에 반비례 ($R = k\lambda^{-1/2}$)하고 있으나 실제 原子爐에서의 實驗結果는 λ^{-n} ($0.5 \leq n \leq 1$)에 比例하고

- 擴散係數나 放射化에너지와 같은 基本資料가 충분치 못하여 실험결과와 잘 일치하지 않으며

- Booth 모델은 Rare gas에 대해 낮은 出力에서의 流出率이 過少評價되고 높은 出力에서 過大評價되고 있다.

또한 Turnbull은 半徑 $600\mu\text{m}$ 의 UO_2 球에서

重要放射性物質의 擴散을 照射實驗을 통하여 취급하고 있다.¹³⁾ 여기에서 核分裂가스 流出은 UO_2 가 開放型多空性일 때는 직접적으로 일어나고, 閉鎖型多空性일 때는 流出이 지연되고 있다고 가정하고 있다.

이 모델은 流出率과 붕괴상수 사이의 變化를 잘 나타내고 있다는 長點이 있으나 安定同位元素의 총체적으로 流出을 취급하고 있기 때문에 同位元素 個個의 流出에 대해서는 고려하지 않고 있다.

2) 熱 모델

이 모델은 核燃料溫도와 流出率사이의 關係를 實驗에 의해 규명하는 방법이다.

Hoffmann 등은 實驗結果를 근거로 하여 VAT (Volumetric Average Temperature) 개념을 도입하여 VAT와 核分裂生成가스의 流出率의 相關關係를 제시하고 있다.¹⁴⁾

한편 Beyer와 Hann은 이미 發表된 實驗結果를 이용하여 核燃料溫度에 따른 核分裂生成物の 流出率을 단계적으로 구분하여 導出하고 있다.¹⁵⁾ 즉 핵연료온도 θ 가

- $\theta > 1,700^{\circ}\text{C}$ 일 때 UO_2 의 Grain이 熱勾配 方向으로 팽창하며 流出率은 0.81이다.

- $1,400^{\circ}\text{C} < \theta < 1,700^{\circ}\text{C}$ 일 때, UO_2 Grain의 팽창은 모든 方向으로 동일하게 일어나며 이때 流出率은 0.14이다.

- $1,200^{\circ}\text{C} < \theta < 1,400^{\circ}\text{C}$ 에서는 核燃料의 構造는 變하지 않으며 流出率은 0.005이다.

- $\theta < 1,200^{\circ}\text{C}$ 에서는 Bellamy가 이용한 Knock-out모델을¹⁵⁾ 修正하여 사용하고 있다. 이 모델에서는 核分裂生成物の 流出과 核燃料의 燃燒率 및 密度사이의 關係는 제시하지 않고 있다.

또한 Chénebault 등은 同位元素가 流出될때 生成된 核種中 一定한 率 f만이 流出現象에 관여한다고 가정하여 Mass balance式을 해석하고 있다.¹⁶⁾ 따라서 安定同位元素에 대해서는 流出率 $R=f$ 가 되며 방사성가스에 대해서는 여기에

붕괴상수에 대한 보정을 하고 있다. 따라서 이 모델은 安定同位元素나 放射性同位元素에 대해 하나의 式으로 表現할 수 있는 잇점이 있으나 매우 짧은 半減期를 갖는 核種에 대해서는 잘 맞지않고 또한 流出率이 溫度에 따라 별로 변화하지 않는 결점이 있다.

이상에서 살펴본 熱모델은 放射性가스의 流出 기구에 대한 일반적인 方案을 제공하지 못하고 있으며 또한 핵연료의 精確한 溫度를 알아야 된다는 문제점이 있다.

3) 核燃料의 微細組織에 의한 모델

전자현미경에 의해 核燃料내에 포함되어 있는 核分裂生成가스를 관측하여 流出機構의 物理的現象을 규명하는 方法으로 核燃料의 Grain이나 Grain들의 接合部를 관측하여 流出機構를 說明하고 있다.

核燃料의 微細構造를 관측하면 Grain 내부에 直徑이 數 Å 程度의 氣泡가 形成되어 있으며 이는 放射線照射에 의한 UO_2 結晶의 Dislocation이나 缺陷에 기인된 것이다.¹⁷⁾ 이 氣泡는 孤立原子들과 결합하여 體積을 증가시키며 擴散이나 Dislocation의 Migration에 의해 이동하게 된다.¹⁸⁾

한편 核分裂生成物의 移動經路에서 氣泡가 깨어져 分解하기도 하며 이때 氣泡全體가 파괴되는 경우와 氣泡의 表面에 있는 原子가 환원되는 경우도 볼 수 있다.^{19,20)} 또한 Grain의 接合部内에서는 Grain内部에서 보다 훨씬 큰 直徑이 數 μm 에 달하는 氣泡가 형성되며 이는 核燃料内部의 가스가 팽창함으로써 생성된 것으로 보고 있다. 이것도 마찬가지로 주위 원자와 결합 또는 癒着에 의해 體積을 증가시키어 Grain의 모서리에 모이게 된다. 이러한 氣泡가 이동하면서 生成한 Tunnel은 核分裂生成物의 流出現象에 큰 영향을 주게 된다.^{21,22)}

이와 같은 流出現象에 따라 제시되고 있는 流出모델은 일반적으로 氣泡의 半徑을 變數로 하

여 擴散方程式을 세우고 癒着確率과 關聯지어 解析하고 있다.^{23,24,25)}

이러한 모델사이의 차이점은 氣泡의 再分解現象의 처리에 따라 달라지고 있으며 주로 가스의 팽창을 계산하기 위해 安定同位元素에 대해 모델을 導出하고 있으나 現象이 매우 복잡하여 많은 파라메타들을 조정할 필요가 있기 때문에 아직까지 動力爐에서 核分裂가스 流出에 直接適用하지는 못하고 있는 實情이다.

이상에서 기술한 바와 같이 정상운전 상태에서 핵분열생성물의 유출은 溫度와 무관한 反跳, Knock-out현상과 溫度에 따른 流出現象을 모두 고려하여 Mass balance式을 세울 수 있다.

$$\frac{dN_{fi}}{dt} = B_i - [R_{fi} - \lambda_i + (\sigma\phi)_i] N_{fi}$$

$$R_{fi} = (R_{recon} + R_{ko} + R_{nt})$$

여기서 R은 流出率, N_{fi} 는 핵연료내에서 i核種의 수, B_i 는 生成率, $(\sigma\phi)_i$ 는 중성자포획에 의해 i핵종이 다른 핵종으로 변환하는 확률이며 λ_i 는 붕괴상수이다.

3. 核分裂生成物의 一次系로의 流出

UO_2 에서 核分裂生成物의 流出은 앞절에서 본 바와 같이 많은 研究가 수행되어 왔으나 Gap을 통하여 一次系로 流出되는 過程에 대한 研究結果는 많지 않다.

一般的으로 UO_2 를 빠져나온 核分裂生成物은 一定時間동안 Gap에 머문 후 被覆材의 缺陷을 통하여 一次系로 流出된다고 생각해야 할 것이다. 그러나 이 효과는 매우 짧은 반감기를 갖는 核種을 제외하고는 큰 영향을 주지는 않는다.

다만 요드와 같이 Gap 내에서 Zircaloy와 반응을 하거나 Gap내에 축적이 잘되는 同位元素에 대해서는 특별히 유의하여야 할 필요가 있다 핵분열생성물이 일차계로 유출되는 모델은 2가지로 분류할 수 있다.

가. Westinghouse모델^{26,27)}

이 모델은 Gap내에서의 영향을 무시하고 냉

각계로 유출되는 핵분열생성물은 핵연료에서流出되는 핵종의數에 직접 비례하는 것으로 가정하고 있다.

$$R = \nu N_f$$

여기서 ν 은 流出係數이다.

核燃料의 缺陷率을 Da 라 하면 Mass balance는

$$\frac{dN_f}{dt} = Da_f \cdot Y - \lambda N_f - \nu N_f$$

$$\frac{dN_p}{dt} = \nu N_f - \lambda N_p - \beta N_p$$

로 되며 여기서 f 는 단위시간당 핵분열數, Y 는 핵분열생성물, N_p 는 일차계에서의 특정핵종의 원자수 및 β 는 정화율이다. 따라서 1차냉각재내에 함유되어 있는 특정핵종의 방사능을 측정하므로써 缺陷率 Da 를 결정할 수 있다.

그러나 爐心에 우라늄이 오염되어 있는 경우 오염량을 補正하여야 되며 이를 위해 同一核種의 同位元素 i, j 를 測定하여

$$A_i^p = \left(\frac{\lambda_j}{\lambda_j - \lambda_i} \right) A_i^p - \left(\frac{Y_i}{Y_j} \cdot \frac{\lambda_i}{\lambda_j - \lambda_i} \cdot \frac{\lambda_j + \beta}{\lambda_i + \beta} \right) A_i^o$$

의 關係式으로 부터 補正이 可能하다. 여기서 A_i^o 는 일차냉각재내의 i, j 핵종의 방사능, A_i^p 는 순수결합에 의한 방사능이다. 따라서 補正된 缺陷率은 $Dc = Da(A_i^p/A_i^o)$ 가 된다.

이 모델은 주로 요드同位元素의 放射能을 測定하여 缺陷率을 決定하고 있으나 Gap內에서의 效果를 고려하고 있지 않기 때문에 문제점이 있다고 보겠으며 또한 기준결합의 進전에 따라 發生되는 새로운 결합을 구별하기가 힘들다.

한편 Aoki도 一次冷却材의 요드동위원소의 濃度를 測定하여 缺陷率, 表面汚染量, 缺陷核燃料棒의數 등을 결정하는 자세한 解析을 하고 있으나 基本的인 Mass balance式은 Westinghouse 모델에서 취급하는 방법과 大同소이다 하겠다.²⁸⁾

나) PROFIP 모델

이 모델은 일차냉각재의 방사능을 이용하여 破損核燃料의數, 缺陷의 크기, 缺陷核燃料溫度

및 燃燒度를 決定할 수 있도록 되어 있다. 여기에서는 反跳, Knock-out 現象 및 Chénebault 모델을 修正하여 溫度에 따른 流出現象을 모두 고려하고 있으며 가장 두드러진 특징은 核分裂生成物이 核燃料로부터 流出되어 Gap에 일단 축적되며 一次冷却系로는 Gap에서의 流出로 취급하는 것이라 하겠다. 따라서 一次系로의 流出은

$$R_{gi} = \nu_{gi} N_{gi}$$

가 되며 R_{gi} 는 Gap에서 流出되는 i 核種의數, ν_{gi} 는 流出確率, N_{gi} 는 Gap內에서 i 核種의數이다. 한편 가스상태가 아닌 核種은 被覆材의 表面에 一部가 物理的이나 化學的인 흡수를 일으키게 되므로 흡수계수 $\alpha_i = M_{gi}/C_{gi}$ 를 도입하여 사용하고 있다. 여기서 M_{gi} 는 被覆材표면에 축적되는 i 핵종의 量(g/cm^2), C_{gi} 는 Gap內에서 i 핵종의 濃度(g/cm^3)이다. 따라서 Gap 내에서의 Mass balance는

$$\frac{d}{dt} \left[N_{gi} \left(1 + \alpha_i \frac{S}{V} \right) \right] = \left[R_{Ti} - \nu_{gi} + (\lambda_i + \sigma_i \phi) \left(1 + \alpha_i \frac{S}{V} \right) \right] N_{gi}$$

가 되며 결과적으로 一次冷却材에서의 核分裂生成物의 濃度는

$$\frac{dN_{ci}}{dt} = \nu_{gi} N_{gi} - (\lambda_i + \beta_i + \sigma_i \phi)$$

가 된다.

Westinghouse 모델에 비해 FRDFIP 모델은 Mass balance를 Gap에서 냉각재로의 流出過程으로 취급하는 것이 큰 차이점이라 볼 수 있으며 이 모델은 현재까지 運轉中인 原子爐核燃料 缺陷評價모델 중에서 가장 적용하기 좋은 모델로 인정되고 있다.

II. 核燃料破損檢出方法

運轉中인 輕水爐에서 核燃料被覆材의 缺陷檢出은 冷却水를 on line이나 off-line으로 採取하여 여기에 含有되어 있는 核分裂生成物의 放射

能을 測定하는 方法을 이용하고 있다. 이는 核分裂生成物의 特性에 따라

- Gamma線 分光法
- Delayed Neutron測定法
- 沈澱法

〈表2〉 FISSION PRODUCTS AND THEIR DAUGHTER ISOTOPES FOR BETA & GAMMA RADIATION DETECTION

| NUCLIDE | HALF LIFE | INTENSITY (MeV) |
|---------|-----------|--|
| Kr-85m | 4.4hr | β^- 0.83 |
| | | γ 0.15, 0.30 |
| Kr-87 | 78min | β^- 3.8(70%), 1.3(2.5%) |
| | | γ 0.40, 0.85 |
| Kr-88 | 2.8hr | β^- 0.52(68%), 2.8(20%), 0.9(12%) |
| | | γ 0.028, 0.19, 1.5, 2.4 |
| Kr-89 | 3.2min | β^- 4.0 |
| Kr-90 | 33sec | β^- 3.2 |
| Kr-91 | 9.8sec | β^- 3.6 |
| Rb-88 | 17.8min | β^- 5.3, 2.5 |
| | | γ 1.86, 0.90 |
| Rb-89 | 15min | β^- 3.9 |
| | | γ 1.1, 0.67 |
| Rb-90 | 2.7min | β^- 5.7 |
| Rb-91 | 100sec | β^- 4.6 |
| Mo-99 | 67hr | β^- 1.2(83%), 0.4(14%) |
| | | γ 0.14, 0.18, 0.74 |
| I-131 | 8 day | β^- 0.61(87%) |
| | | γ 0.36(80%) |
| I-132 | 2.3hr | β^- 2.1(18%), 1.5(24%), 1.2(23%) |
| | | γ 0.7, 0.5, 0.8 |
| I-133 | 20.8hr | β^- 1.4(94%) |
| | | γ 0.53(94%) |
| I-134 | 52.5min | β^- 2.5 |
| | | γ 0.86, 0.1 |
| I-135 | 6.7hr | β^- 0.5(35%), 1.0(40%), 1.4(25%) |
| | | γ 0.53(27%), 1.1(37%), 1.3(34%), 1.7(19%) |
| Te-132 | 77hr | β^- 0.2 |
| | | γ 0.23 |
| Xe-133 | 5.3day | β^- 0.34 |
| | | γ 0.08 |
| Xe-135 | 9.2hr | β^- 0.91 |
| | | γ 0.25, 0.36, 0.61 |
| Xe-138 | 17min | β^- 2.4 |
| | | γ 0.42, 0.51 |
| Cs-137 | 27year | β^- 0.51(91%) |
| | | γ 0.66 |
| Cs-138 | 32min | γ 1.4(73%), 1.0(25%), 0.46(23%), 2.2 |

으로 분류할 수 있으며 이러한 技術들을 缺陷核燃料의 位置判定方法과 연관하여 사용하기도 한다.

1. Gamma線 分光法

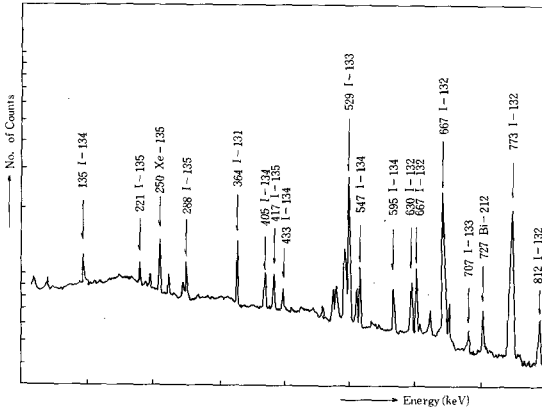
破損核燃料에서 流出되는 核分裂生成物은 比較的 γ -放射能이 強하기 때문에 간단한 裝置로도 破損檢出이 可能하며 半減期가 긴 核種들이 많아 破損후 어느정도 시간이 지나도 檢出이 可能하다는 見解가 있다. 그러나 輕水爐에서는 앞장에서 이야기한 바와 같이 放射化生成物, 腐蝕生成物 및 其他汚染에 의한 Background가 높은 것이 단점이라 하겠다. 이 方法에 이용되고 있는 主要핵종 및 Background 핵종에 대한 γ -線 特性은 表2와 表3에서 보는 바와 같다.

Background效果를 줄이는 方法으로 冷却材를 濾터나 이온교환수지를 이용하여 불필요한 核種을 제거시키기도 한다. 예를 들면 Cation 수지로 불순물핵종을 제거하고 Anion수지로 核

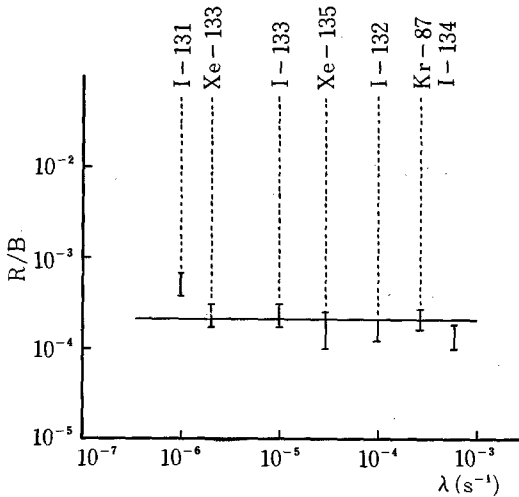
〈表3〉 BACKGROUND NUCLIDES

| NUCLIDE | HALF LIFE | INTENSITY (MeV) |
|---------|-----------|---------------------------|
| T-3 | 12.3year | β^- 0.018 |
| N-13 | 10min | β^+ |
| N-16 | 7.4sec | β^- 10.4, 4.4 |
| | | γ 6.13 |
| O-15 | 2 min | β^+ 1.7 |
| O-19 | 29sec | β^- 4.5, 2.7 |
| | | γ 0.2, 1.4 |
| F-17 | 67sec | β^+ 1.7 |
| F-18 | 112min | β^+ 6.4 |
| Na-22 | 2.6year | β^+ 0.5 |
| Na-24 | 15hr | γ 1.27 |
| | | β^- 1.39 |
| Ar-41 | 110min | γ 1.37, 2.75 |
| | | β^- 1.2 |
| Cr-51 | 28day | γ 1.3 |
| Mn-56 | 2.6hr | β^- 2.86, 1.1, 0.75 |
| | | γ 0.85, 1.81 |
| Co-60 | 5.3year | β^- 0.31 |
| | | γ 1.17 |
| Cu-64 | 12.8hr | β^- 0.57 |
| | | γ 1.35 |
| W-187 | 24hr | β^- 1.3, 0.63, 0.34 |
| | | γ 0.07, 0.13, 0.48 |

〈그림1〉 ON-LINE REACTOR COOLANT SPECTRUM 100% POWER OF KORI UNIT 1



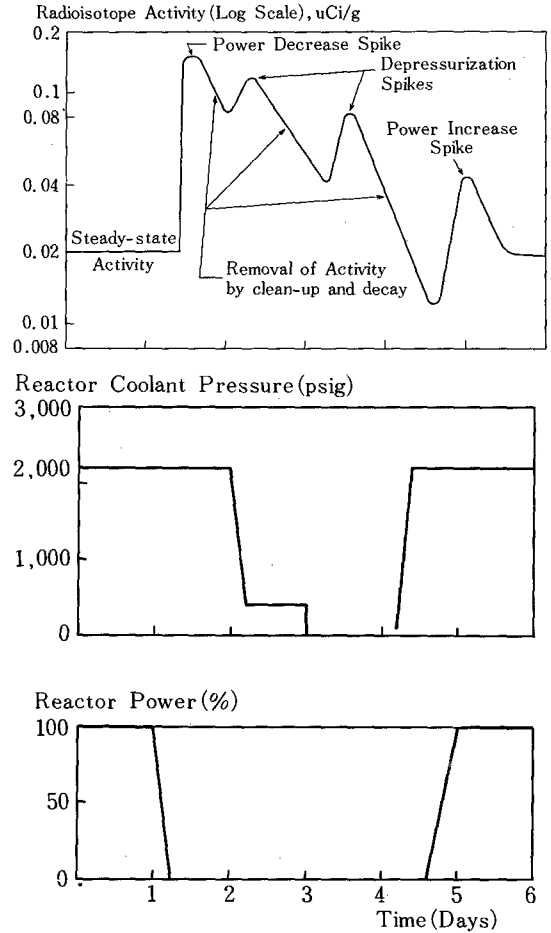
〈그림3〉 FRACTIONAL F.P. RELEASE RATE AS A FUNCTION OF THE DECAY CONSTANT (SIMPLE CONTAMINATION)



分裂生成核種을 추적시키는 방법 등이다. 한편 半減期가 긴 核種에 대해서는 다른 不純物核種이 붕괴하기를 기다려서 測定하기도 한다. 近來에는 매우 분해능이 좋은 Ge(Li) - 검출기나 H. P. Ge - 검출기를 이용하여 매우 정확하게 핵종이나 농도를 分析할 수 있으며 例로서 그림1은 古里1號機의 一次冷却材에 대한 γ -Spectrum을 보여주고 있다.

運轉中인 原子爐의 核燃料被覆材의 缺陷檢出에 가장 널리 이용되는 核種은 요드同位元素이

〈그림2〉 TYPES OF IODINE SPIKES



다. 우선 간단한 결함有無를 判定하기 위한 方法으로 "Iodine Spike" 現象의 관측이다.

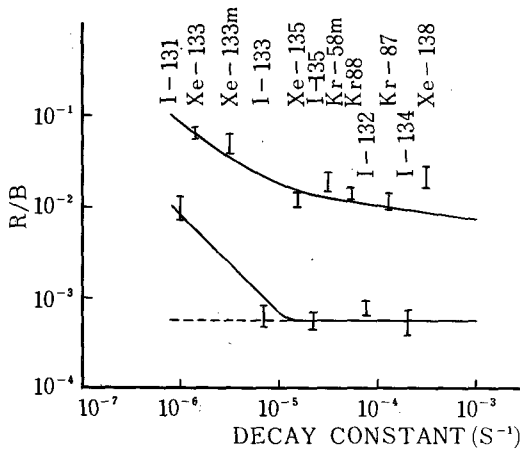
Iodine Spike 현상은 결함핵연료가 있는 輕水爐의 運轉과정에서 出力이나 一次系의 壓力이 급히 變化할 때 冷却材內에 요드와 같은 特定同位元素의 放射能이 增加하게 된다. 이는 核分裂이나 붕괴과정을 통해 새로운 核種이 生成된 것이 아니라 核燃料의 缺陷을 통하여 Cs이나 Ru와 같은 水溶性鹽을 形成하는 元素들이 出力이나 壓力이 變化할 때 冷却材로 쉽게 녹아나오고 있으며 이러한 元素들은 Cs나 RuI형태로 요드를 포함하게 되므로 出力의 變化時 요드 放射能이 일시적으로 증가하는 現象을 Iodine

Spike라 한다.

原子爐의 出力 및 壓力減少에 따른 일련의 Iodine Spike 현상은 그림2에서 보는 바와 같다. Iodine Spike 현상은 결함의 크기나 형태에 따라 달라지며 새로운 缺陷發生이 約 12時間 정도의 時間差만 있으면 서로 분리 검출이 可能하다.

한편 앞장에서 설명한 Westinghouse 모델이

(그림4) R/B AS A FUNCTION OF DECAY CONSTANT (TIHANGE REACTOR, CYCLE 2)



(表4) SUMMARY OF THE CALCULATED CONTRIBUTIONS OF 47 PRECURSORS TO DELAYED NEUTRON GROUP YIELDS IN THERMAL NEUTRON FISSION OF U²³⁵

| GROUP | PRECURSOR | HALF-LIFE (s) | PROBABILITY (%) | YIELD/10 ⁴ FISSION | | | |
|-------------|------------------|---------------|-----------------|-------------------------------|---------------|--------------------------|--------------|
| 1 (55 s) | ⁸⁷ Br | 55.69 ± 0.11 | 2.34 ± 0.19 | 4.92 ± 0.56 | | | |
| | | | | 4.92 ± 0.56 | | | |
| 2 (22 s) | ⁸⁸ Br | 15.89 ± 0.10 | 4.54 ± 0.30 | 10.88 ± 1.21 | | | |
| | | | | ¹³⁷ I | 24.64 ± 0.08 | 4.46 ± 0.83 | 16.41 ± 3.42 |
| | | | | ¹⁴¹ Cs | 24.92 ± 0.17 | 0.073 ± 0.011 | 0.35 ± 0.07 |
| | | | | ¹³⁴ Sb | 11.04 ± 0.30 | 0.08 ± 0.02 | 0.09 ± 0.03 |
| | | | | ¹³⁴ Sn | 22.72 ± 22.72 | (6.1 ± 0.7) ^a | 0.10 ± 0.10 |
| | | | | ¹³⁶ Tc | 20.90 ± 0.50 | 0.5 ± (0.4) | 0.62 ± 0.45 |
| | | | | | | | 28.43 ± 3.67 |
| 3 (6 s) | ⁸⁷ Se | 5.60 ± 0.13 | 0.18 ± 0.03 | 0.12 ± 0.03 | | | |
| | | | | ⁸⁹ Br | 4.53 ± 0.08 | 8.00 ± 0.73 | 14.57 ± 2.20 |
| | | | | ⁹² Rb | 4.50 ± 0.02 | 0.012 ± 0.004 | 0.06 ± 0.02 |
| | | | | ⁹³ Rb | 5.86 ± 0.09 | 1.46 ± 0.16 | 6.10 ± 0.87 |
| | | | | ¹³⁸ I | 6.47 ± 0.11 | 2.56 ± 0.49 | 5.22 ± 1.24 |
| | | | | ⁸⁴ As | 5.60 ± 0.30 | 0.13 ± 0.06 | 0.06 ± 0.03 |
| | | | | 26.13 ± 2.67 | | | |

나 Aoki方法도 요드同位元素를 測定하여 核燃料의 缺陷率, 缺陷燃料棒의 數, 表面汚染量 등을 評價하고 있다.

반면에 PROFIP 모델에서는 여러개의 핵분열 생성물의 物理的 特性을 이용하여 定量的으로 평가함으로써 破損核燃料棒의 數, 溫度, 燃燒度, 破損의 크기 등을 결정하고 있다.

우라늄의 表面汚染에 의한 核分裂生成物의 流出率은 주로 反跳現象에 關係되기 때문에 붕괴 상수와는 關係없이 일정하고 核燃料破覆材의 缺陷에 의한 効果는 Gap을 통하여 流出되기 때문에 붕괴상수와 밀접한 關係를 갖게 되므로 (그림3 및 그림4) 요드나 Rare gas의 同位元素의 放射能을 測定하여 單純汚染量을 評價할 수 있다.

또한 짧은 半減期를 갖는 核分裂生成物의 결함을 통한 流出은 주로 反跳나 Knock-out 현상에 關係되고 진반감기의 핵종은 파손연료의 溫度에 주로 影響을 받게되므로 온도에 따른 일차 냉각재의 방사능은 짧은 핵종(Kr⁸⁷, Kr⁸⁸, Xe¹³⁸, Xe¹³⁵ 등)에 대해서는 완만한 증가율을 보이는 반면 진반감기의 핵종(Xe^{133m}, Xe¹³³ 등)은 온도에 따라 급격히 증가한다(그림5). 따라서 짧은 반감

기핵종에 대한 방사능의 비(Kr^{87}/Xe^{135} , Xe^{138}/Xe^{135} , Cs^{138}/Xe^{135} 등)는 온도에 關係없이 缺陷의 크기에만 의존함을 볼 수 있고 計數管의 핵종에 대한 방사능비(Xe^{133}/Xe^{135} , Xe^{133m}/Xe^{135} 등)는 온도에 의존하는 量이므로 結合 핵연료의 온도와 出力을 결정할 수 있게 된다(그림6).

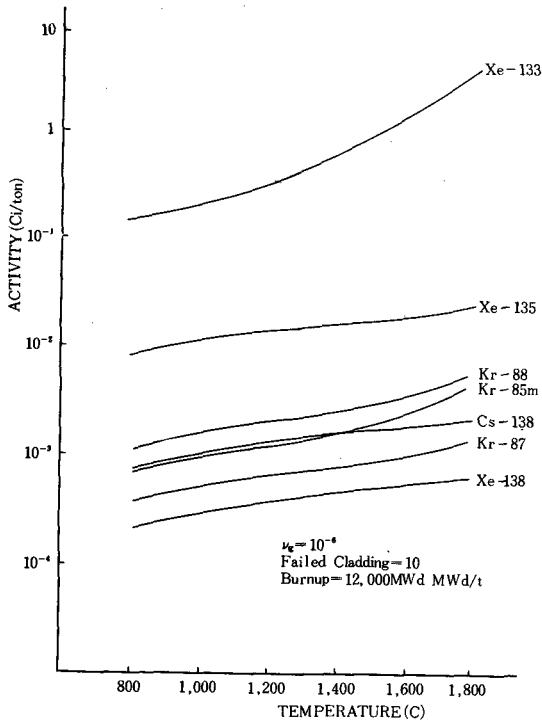
2. 遲發中性子測定에 의한 方法

冷却材内에 含有되어 있는 몇몇의 核分裂生

成物은 遲發中性子を 放出하며 이를 측정하여 被覆材의 缺陷을 檢出하는 方法이다. U^{235} 의 핵분열과정에서 遲發中性子を 방출하는 核種은 表 4에서 보는 바와 같다.³⁾ 그러나 이들의 半減期나 生成率을 고려한다면 Br^{87} , I^{137} , Br^{86} 만이 方法에 이용될 수 있으며 다른 핵종은 計數管이 불과 4초미만으로 시료채취과정에서 붕괴되어 버리고 만다. 한편 핵분열생성물 이외의 Back-

| GROUP | PRECURSOR | HALF-LIFE(S) | PROBABILITY(%) | YIELD/10 ⁴ FISSION |
|-------------------|-------------------------------|------------------|----------------|-------------------------------|
| 4 (2 s) | ⁸⁴ Ge | 1.20 ± 0.30 | (8.9 ± 1.1) | 0.24 ± 0.13 |
| | ⁸⁵ As | 2.03 ± 0.01 | 18.0 ± 4.0 | 4.58 ± 1.37 |
| | ⁸⁸ Se | 1.50 ± 0.06 | 0.5 ± 0.3 | 0.16 ± 0.11 |
| | ⁹⁰ Br | 1.69 ± 0.07 | 9.53 ± 1.52 | 8.83 ± 2.49 |
| | ⁹² Kr | 1.85 ± 0.01 | 0.04 ± 0.01 | 0.06 ± 0.02 |
| | ⁹³ Kr | 1.29 ± 0.02 | 3.2 ± 0.6 | 1.72 ± 0.66 |
| | ⁹⁴ Rb | 2.71 ± 0.03 | 9.71 ± 0.92 | 24.36 ± 3.75 |
| | ¹³⁵ Sb | 1.70 ± 0.02 | 8.0 ± 2.0 | 1.53 ± 0.89 |
| | ¹³⁷ Te | 3.50 ± 0.50 | 0.5 ± (0.4) | 0.18 ± 0.14 |
| | ¹³⁹ I | 2.57 ± 0.09 | 8.8 ± 1.8 | 6.24 ± 2.24 |
| | ¹⁴¹ Xe | 1.73 ± 0.01 | 0.054 ± 0.009 | 0.06 ± 0.02 |
| | ¹⁴² Xe | 1.24 ± 0.03 | 0.51 ± 0.09 | 0.17 ± 0.07 |
| | ¹⁴² Cs | 1.89 ± 0.06 | 0.21 ± 0.06 | 0.71 ± 0.21 |
| | ¹⁴³ Cs | 1.68 ± 0.07 | 1.13 ± 0.25 | 2.02 ± 0.53 |
| | ¹⁴⁴ Cs | 1.06 ± 0.08 | 1.10 ± 0.25 | 0.66 ± 0.24 |
| | ⁹⁷ Y | 1.11 ± 0.03 | 1.60 ± 0.30 | 8.69 ± 1.78 |
| | ¹³³ Sn | 1.47 ± 0.04 | (0.5 ± 0.4) | 0.07 ± 0.06 |
| | 5 and 6 (0.6 and 0.2 s) | ⁹¹ Br | 0.64 ± 0.03 | 8.3 ± 2.5 |
| ⁹⁴ Kr | | 0.21 ± 0.01 | (4.7 ± 0.5) | 2.12 ± 1.15 |
| ⁹⁵ Kr | | 0.50 ± 0.50 | (8.3 ± 1.0) | 0.57 ± 0.35 |
| ⁹⁵ Rb | | 0.38 ± 0.01 | (7.84 ± 0.72) | 0.13 ± 0.13 |
| ⁹⁶ Rb | | 0.204 ± 0.003 | 12.86 ± 1.02 | 7.67 ± 1.98 |
| ⁹⁷ Rb | | 0.17 ± 0.01 | 27.2 ± 3.0 | 3.40 ± 1.59 |
| ¹³⁸ Sb | | 0.61 ± 0.61 | 27.2 ± 3.0 | 1.23 ± 0.97 |
| ¹³⁸ Sb | | 0.61 ± 0.61 | 13.0 ± 1.5 | 0.34 ± 0.31 |
| ¹⁴¹ I | | 0.44 ± 0.04 | 30.0 ± 17.0 | 0.68 ± 0.72 |
| ¹⁴³ Xe | | 0.67 ± 0.09 | (1.5 ± 1.1) | 0.10 ± 0.10 |
| ¹⁴⁴ Xe | | 0.61 ± 0.61 | (1.0 ± 0.7) | 0.07 ± 0.005 |
| ¹⁴⁵ Xe | | 0.61 ± 0.61 | (2.2 ± 1.7) | 0.0009 ± 0.0009 |
| ⁹⁹ Y | | 0.80 ± 0.70 | (4.20 ± 0.50) | 10.27 ± 1.66 |
| ⁸⁶ As | | 0.90 ± 0.20 | 4.0 ± 1.7 | 0.43 ± 0.26 |
| ⁹² Br | | 0.26 ± 0.03 | 16.0 ± 7.0 | 0.72 ± 0.64 |
| ¹⁴⁰ I | | 0.86 ± 0.03 | 17.44 ± 5.36 | 2.89 ± 1.80 |
| ¹⁴⁵ Cs | 0.59 ± 0.02 | 12.1 ± 1.4 | 1.25 ± 0.69 | |
| ⁹⁸ Y | 0.30 ± 0.30 | 0.7 ± 0.4 | 2.70 ± 1.56 | |
| Total | | | | 34.50 ± 4.35 |
| | | | | 154.26 ± 8.47 |

〈그림5〉 NUCLIDE ACTIVITY AS A FUNCTION OF FISSION RATE

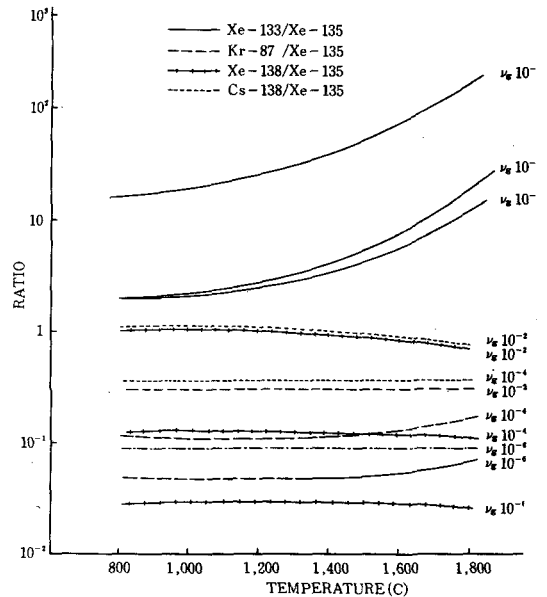


ground로 강력하게 작용하는 핵종은 N^{17} ($T_{1/2} = 4.4\text{sec}$)로서 이를 제거하기 위해 爐心에서 試料採取時間을 적절히 조절하여야 한다. 그림 7에서 보는 바와 같이 시료채취시간은 약 1분 정도가 가장 적절함을 볼 수 있으며 대부분의 경우 on-line에 의해 시료를 채취함으로써 지연 시간을 조절하고 있다.

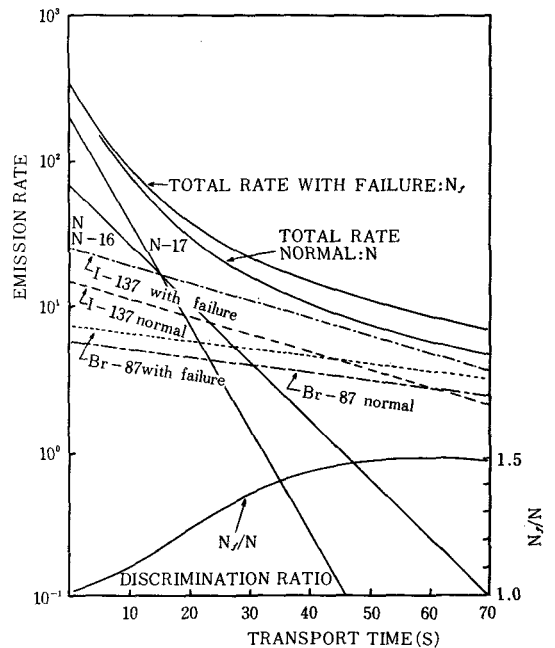
遲發中性子檢出器는 He^3 나 BF_3 比例計數와 같은 熱中性子檢出器를 주로 이용하고 있으며 檢出器 前段에서 減速材로 遲發中性子を 減速시켜 측정한다.^{35, 36)}

이 方法은 冷却水의 순환주기에 비해 遲發中性子放出核의 半減期가 짧기 때문에 冷却材의 再순환에 따른 Build-up 효과를 最少化할 수 있고 Background를 쉽게 제거할 수 있는 잇점이 있으나 核燃料狀態에 대한 定量的인 評價가 不可能하기 때문에 燃料破損에 대한 迅速한 情報

〈그림6〉 NUCLIDE RATIO AS A FUNCTION OF FUEL TEMPERATURE

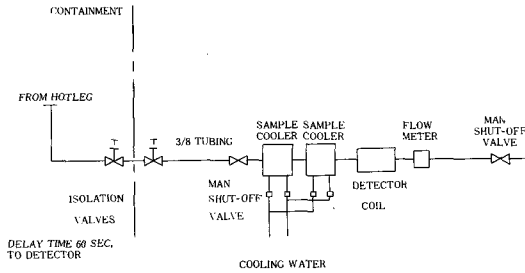


〈그림7〉 EFFECTS OF SAMPLE TRANSPORT DELAY ON NEUTRON SOURCE STRENGTHS



를 얻기 위한 수단으로 주로 이용되고 있다. 현재 古里2號機의 核燃料破損檢出裝置가 이 方法이 사용되며 장치구성은 그림8과 같다.

〈그림8〉 GROSS FAILED FUEL DETECTOR FLOW DIAGRAM



3. 沈澱法

核分裂生成物인 Kr이나 Xe은 β -붕괴를 하여 +電荷를 갖는 固體형태의 Rb와 Cs으로 변환된다. 核分裂生成가스를 밀폐된 沈澱器內에 주입하여 電位差를 주게되면 -전극에 Rb와 Cs 沈澱되며 電極을 移動시켜 이들이 다시 붕괴를 하여 Sr 및 Ba로 변환하는 과정에서 방출하는 β 를 Scintillator에 의해 檢出하는 方法이다.³⁸⁾ Kr과 Xe同位元素의 붕괴계열은 表5와 같다.

이 方法은 Kr이나 Xe 및 이들의 子核의 붕괴를 이용한 測定이므로 시간적인 지연이 따르게 되며 대개는 10분 정도로서 충분하다. 따라서 Long leak path를 갖는 파손검출은 어려움이 따르게 되고 또한 원자로 정지시에는 측정이 불가능하게 된다.

輕水爐와 같이 冷却材가 액체인 경우 沈澱器에 冷却材內에 있는 核分裂가스를 분리하여 주입하여야 하므로 Scrubber장치를 이용하여 해결하고 있다.³⁹⁾

이 方法은 연구로나 중수로에서는 많이 이용되고 있으나 발전용 경수로에서는 별로 이용이 흔치않다.⁴⁰⁾

앞에서 설명한 破損核燃料 檢出方法 이외에 Tagging法이 있다. 이 方法은 核燃料棒內에 特定同位元素의 比를 갖는 標識元素를 주입하여 核燃料被覆材의 破損時 冷却材로 流入된 標識元素를 질량분석기로 檢출하는 方法이다. 이 方法은 액체금속냉각材인 EBR-II 원자로에서 처

〈表5〉 DECAY CHAIN OF KRYPTON AND XENON ISOTOPES

| | | | | | | |
|------------|---------------------------------|------------|----------------------------------|------------|---------------------------------|------------|
| Kr^{88} | $\xrightarrow[2.8hr]{\beta^-}$ | Rb^{88} | $\xrightarrow[17.8min]{\beta^-}$ | Sr^{88} | | |
| Kr^{89} | $\xrightarrow[3.2min]{\beta^-}$ | Rb^{89} | $\xrightarrow[15min]{\beta^-}$ | Sr^{89} | | |
| Kr^{90} | $\xrightarrow[33sec]{\beta^-}$ | Rb^{90} | $\xrightarrow[2.7min]{\beta^-}$ | Sr^{90} | $\xrightarrow[2.0yr]{\beta^-}$ | Y^{90} |
| Kr^{91} | $\xrightarrow[9.8sec]{\beta^-}$ | Rb^{91} | $\xrightarrow[100sec]{\beta^-}$ | Sr^{91} | $\xrightarrow[9.67hr]{\beta^-}$ | Y^{91} |
| Xe^{138} | $\xrightarrow[17min]{\beta^-}$ | Cs^{138} | $\xrightarrow[32min]{\beta^-}$ | Ba^{138} | | |
| Xe^{140} | $\xrightarrow[16sec]{\beta^-}$ | Cs^{140} | $\xrightarrow[66sec]{\beta^-}$ | Ba^{140} | $\xrightarrow[12.8d]{\beta^-}$ | La^{140} |

음 시도되었으나⁴¹⁾ 輕水爐에도 이 方法을 적용하여 開發하고 있다.^{42,43)} Tag 元素로는 주로 Kr이나 Xe을 이용하고 있으며 PWR의 경우 일차 냉각제의 용량이 매우 크기 때문에 Tag 원소가 희석되어 회수하는데 많은 어려움이 따르고 있어 일반적으로 사용되지 않는 실정이다.⁴⁴⁾

III. 結 言

輕水爐의 運轉經驗으로 미루어 運轉中 多量의 核燃料가 破損되거나 原子爐를 정지시킬만큼 냉각제의 방사능이 증가하는 경우는 별로 없다. 그러나 核燃料의 破損으로 인한 核分裂生成物의 流出로 인한 作業從事者의 피폭, 환경오염, 폐기물의 증가 및 核燃料再裝填問題를 고려한다면 使用者側에서 치루어야 할 값비싼 問題點이 된다. 따라서 核燃料의 狀態를 適期에 評價하여 대책을 수립함으로써 이들의 效果를 最小한으로 줄이고 原子爐의 安全 및 경제적인 運轉에 기여토록 하여야 할 것이다.

〈참 고 문 헌〉

1. M. E. Meek, B. F. Rider, Compilation of Fission Product Yields. NEDO-12154.1 (1974)
2. M. J. Bell, ORIGEN, The ORNL Isotope Generation and Depletion Code, ORNL-4628(1973)
3. A. Schurenkamper, R. Souhier, Rapport CEAR

-2588 (1964)

4. Y. Musante, CEA DRE SEN-Report, SEN - 031 (1976)
5. K. Shiba, M. Handa, S. Yamagishi, Jour. of Nucl. Materials, 48 (1973) 253
6. M. Szuta, Jour. of Nucl. Materials 58 (1975) 278
7. S. Yamagishi, T. Tanifugi, Jour of Nucl. Materials 59 (1976) 243
8. J. P. Hairion, R. Souhler, Radiation Damage in Solids, IAEA-SM-120/G. 1 (1969) 297
9. R. A. Lorenz, CONF-790441-8 (1979)
10. A. H. Booth, AECL Report, DCI-17, AECL - 700 (1957)
11. A. H. Booth, G. T. Rymer, AECL-Report CRDC - 720 (1958)
12. G. W. Paker, et al. ORNL-4228 (1968) 11
13. J. A. Turnbull, C. A. Frinskney Jour of Nucl. Materials. 71 (1978) 238
14. C. E. Beyer & C. R. Hann. BNWL-1875 (1974)
15. R. G. Bellamy, J. B. Rich. Jour. of Nucl. Materials 33 (1969) 69
16. P. Chenebault, R. Delmas. CEA Report, Compte Rendu DMG 43/71 (1971)
17. R. M. Cornell Jour. of Nucl. Materials. 38 (1971) 319
18. F. A. Nichols. Jour. of Nucl. Materials. 30 (1969) 143
19. R. S. Nelson, Jour. of Nucl. Materials. 25 (1968) 227
20. J. A. Turnbull, Jour. of Nucl. Materials. 38 (1971) 203
21. W. B. Beere, G. L. Reynolds. Jour. Nucl. Materials. 47 (1973) 51
22. J. A. Turnbull. Jour. of Nucl. Materials 50 (1974) 62
23. M. V. Speight. Nucl. Sci. Eng. 37 (1969) 180
24. H. R. Warner, F. A. Nichols. Nucl. Appl. & Tech.9 (1970) 148
25. M. R. Hayns, M. H. Wood. AERE-R-8012 (1975)
26. P. Bourgeois, FRNC-TH-912 (1972)
27. J. C. PEyran, FRAMATOME-TP/SS 75 · 1466 / 024, 132 (1975)
28. A. Aoki 日本原子力學會誌 19 (1977) 102, 22 (1980) 241, 24 (1982) 945, 25 (1983) 29, 25 (1983) 103
29. J. Gomit. Note CEA-N-2153 (1978)
30. R. Beraha et al. Nucl. Tech. 49 (1980) 426
31. G. G. Eigenwilling, R. Hock Trans. Am. Nucl. Soc. 23 (1976) 258
32. R. Rutz. WCAP-8637 (1975)
33. D. R. Alexander, M. S. Krick. Nucl. Sci & Eng. 62 (1977) 627
34. E. Boeck, IAEA-R-2050F
35. J. Graftieux, R. Donguy, G. Rigois and P. Pouvier, CEA-CONF-4860 (1979)
36. R. Warlop, P. Chénebault, J. P. Stora, CEA. CONF-5813 (1981)
37. KEPCO, FSAR of Kori #2, 9.3-14 (197)
38. K. Mochizuki, 日本原子力學會誌 11 (1969) 19
39. S. Jacobi, Rep. of a Pannel, Detection and Location of Failed Fuel Elements, IAEA, Vienna (1968)
40. K. Mochizuki, T. Ikeda, Ibid. 11 (1969) 129
41. P. B. Henault et. al. Trans. Am. Nucl. Soc. 13 (1970) 797
42. K. C. Gross, L. E. Eckart, A. Shapiro, Trans Am. Nucl. Soc. 13 (1970) 797
43. N. J. McCormick, Trans. Am. Nucl. Soc. 32 (1980) 59
44. K. C. Gross, W. Roos. A. Shapiro. Trans. Am. Nucl. Soc. 24 (1976) 396

