

사용후 핵연료의 핵임계도 분석에 필요한 핵분열생성물의 핵군단면적 생산

신희성 · 최병일 · 박종목 · 노성기

한국원자력연구소

요 약

고리 1 호기의 사용후 핵연료에 함유된 핵종중 핵임계도에 미치는 영향이 큰 22 개 핵종에 대한 핵단면적 자료를 XLACS-II 에 의해서 ENDF/B-IV 로 부터 취해서 FISSLIB(51 군 핵단면적 자료)를 만들었다. 그리고 AMPX 조직에 의해서 DLC-43/CSRL 자료로 부터 생산된 51 군 핵단면적 자료와 함께 사용할 수 있도록 하였다.

한편 BNL-325 와 FISSLIB 을 비교하여 후자의 유용성을 확인하였다. 그리고 FISSLIB 에 수록된 핵분열 생성물 핵종에 대한 핵군단면적을 기본 입력자료로 하여 무한 배열된 고리 1 호기 사용후 핵연료봉에 대한 핵임계도 계산을 수행하였다. 그 결과 냉각기간에 따라 핵분열 생성물 핵종을 고려할 때의 핵임계도는 그것을 무시할 때보다 9-14%의 감소효과를 나타냈다.

I. 서 론

사용후 핵연료 저장시설의 핵임계 안전성 분석은 보수적인 측면에 비중을 두어 대상 핵연료를 신 핵연료로 가정하는 것이 보통이다 [1, 2]. 이와같은 보수적인 가정은 핵임계의 안전성 측면에서는 타당하다고 볼수 있겠지만 경제적인 측면에서는 바람직하지 못하다. 이와같은 점을 고려해서 최근에는 연소도를 고려한 핵임계도 분석이 활발해지고 있다.

외국에서는 Sander [3] Boyd[4] 등이 연소도를 고려해서 핵임계도 분석을 하였으며, 국내에서는 이창건[5] 및 박현수 등[6]이 같은 연구를 하였다. 그러나 국내에서 주단면적 자료로 널리 사용되는 DLC-43/CSRL(중성자 218 군) [7, 8]에는 핵분열 생성물 핵종에 대한 핵군단면적 자료가 수록되지 않아 사용후 핵연료의 핵임계 분석에서 핵분열 생성물 핵종을 고려하지 못했다. [5, 6]. ENDF/B-V[9]에서 만들어진 CSRL-V(중성자

227 군)[10]에는 사용후 핵연료에 포함된 주요 핵분열 생성물 핵종에 대한 자료가 수록되어 있으나 아직 미공개 상태에 있다.

그러므로 본 연구는 DLC-43/CSRL 에 수록되지 않은 핵분열생성물 핵종에 대한 핵군단면적 자료집 FISSLIB 을 생산하고 이 FISSLIB 을 DLC-43/CSRL 과 함께 쓸 수 있도록 하는데 그 목적을 두었다. 그리고 이 자료를 이용하여 무한 배열된 고리 1 호기 사용후 핵연료봉의 핵임계도 분석을 수행하여 핵분열 생성물의 영향을 살펴 보았다. 여기서 FISSLIB 을 생산하는데 필요한 기본 핵상수(단면적) 자료는 ENDF/B-IV[11]에서 발췌하였다.

II. 핵군단면적의 생산

가. 에너지군 구조 선택

현재 국내에서 핵임계 분석 목적으로 널리 사용되고 있는 DLC-43/CSRL, 218 군 핵단면적 자료

Table 1. Upper energy boundaries of neutron energy used for 51 group constant generation

Group	Upper Energy (eV)	Group	Upper Energy (eV)
1	2.000E+07	27	1.000E+01
2	6.434E+06	28	6.250E+01
3	3.000E+06	29	4.000E+01
4	1.400E+06	30	3.000E+01
5	1.010E+06	31	2.380E+00
6	9.000E+05	32	1.680E+00
7	6.000E+05	33	1.400E+00
8	4.000E+05	34	1.150E+00
9	2.000E+05	35	1.090E+00
10	1.000E+05	36	1.040E+00
11	5.000E+04	37	1.000E+00
12	3.000E+04	38	8.000E+00
13	1.700E+04	39	6.000E-01
14	9.500E+04	40	4.000E-01
15	6.000E+03	41	3.000E-01
16	3.000E+03	42	2.250E-01
17	1.550E+03	43	1.550E-01
18	9.500E+02	44	1.000E-01
19	5.500E+02	45	8.000E-02
20	3.050E+02	46	6.000E-02
21	1.860E+02	47	5.000E-02
22	1.000E+02	48	4.000E-02
23	6.100E+01	49	3.000E-02
24	3.960E+01	50	2.530E-02
25	3.000E+01	51	1.000E-02
26	1.700E+01	52	1.000E-03

는 ENDF/B-IV[8]로부터 생산되었으며, 충분한 검증계산을 통하여 그 유용성이 확인된 것이다.

그러나 통상 핵임계 분석을 할 때에는 계산의 경제성, 컴퓨터의 용량등의 문제로 인해 CSRL의 218 군을 그대로 사용하지 않고 AMPX 조직 등을 이용해서 수십군으로 줄여서 사용하는 경우가 많다. 따라서 FISSLIB은 미소군보다는 중간정도의 그룹수로 편집하는 것이 실용면에서 편리할 것으로 판단하여 51 군으로 결정하였다. 이때 사용한 가중합수는 ENDF/B-IV로부터 DLC-43/CSRL를 생산할 때 사용한 가중합수와 같은 것을 택하였다. 표 1에 여기서 선정된 51 군 구조의 경계에너지를 보였다.

나. FISSLIB에 포함할 핵종의 선택

사용후 핵연료에 함유된 핵분열성 핵종중 핵임

계도에 대한 기여도가 큰 핵종들의 핵군단면적 자료는 DLC-43/CSRL[5,6]에 포함되어 있으며, 여기에 포함되지 않은 핵분열성 핵종은 그 함유량이 매우 적거나 핵군단면적 값이 적어 핵임계도에서 무시할 수 있다. 그러나 고리 1호기 사용후 핵연료에 함유된 핵분열 생성물 핵종의 핵군단면적 자료는 대부분 DLC-43/CSRL에 포함되어 있지 않다. 그렇다고 모든 핵분열 생성물에 대한 핵군 단면적 자료를 편집할 필요는 없으므로 핵임계도에 기여가 큰 핵종을 선정할 필요가 있다.

이를 위해 먼저 ORIGEN-2[12] 전산코드를 이용하여 35000 MWD/MTU의 연소도를 갖는 전형적인 사용후 핵연료내에 들어 있는 핵분열성 핵종 및 핵분열 생성물 핵종의 함유량을 산출하고 DLC-43/CSRL에 포함되어 있지 않는 핵분열 생성물 핵종들의 영향을 예측하는 지표로서 핵분열 생성물의 함유량과 참고문헌[13]에서 얻은 유효 단면적 (열중성자 에너지의 단면적과 공명 영역의 단면적을 종합하여 얻은 단면적)을 곱하여 원자량으로 나눈 값으로 추정하여 표 2에 예시했다. 이를 근거로 핵분열 생성물 핵종중 핵임계도의 감소 효과가 큰 핵종으로 분류된 표 2의 22개 핵종에 대해서 51군 핵단면적자료, FISSLIB을 생산했다.

가돌리늄에 대한 핵군단면적 자료는 DLC-43/CSRL에 포함되어 있으나, 그것은 자연상태의 동위원소비로 주어졌기 때문에[14] 동위원소비가 전혀 다른 사용후 핵연료에 대해서는 사용할 수가 없다. 따라서 사용후 핵연료에 함유된 가돌리늄의 각 동위원소별로 각각의 핵군단면적을 산출했다.

다. 생산방법

ENDF/B-IV[10]로부터 핵분열 생성물에 대한 핵군단면적을 생산하는 과정은 그림 1과 같다. 그림 1에서 ENDF/B-IV 자료중 핵분열 생성물 화일을 사용하였으며 XLACS-II[15]에 맞게 확인번호(ID Number)를 수정하고 핵종에 따라 내삽합수를 XLACS-II의 입력범위에 맞게 선형대 선형합수에서 대수대 대수합수로 수정을 하였다. 이와 같은 방법으로 수정된 ENDF/B-IV 화일로 부터

Table 2. Relative contribution of fission products to neutron absorption.

Nuclides	Effective Thermal Cross Section	Cooling Time (Year)			
		0	1	5	10
Kr-83	222	111*	111	111	111
Mo-95	40.8	278	325	325	325
Tc-99	44.4	344	346	346	346
Pd-105	30.8	109	109	109	109
Ru-101	8.93	202	202	202	202
Rh-103	25.1	1799	2003	2003	2003
Xe-131	322	1077	1097	1097	1097
Ce-133	158	1392	1407	1407	1407
CS-134	129	1130	81	21	39
Nd-143	288	1597	1623	1623	1623
Nd-146	86.2	423	423	423	423
Pm-147	1110	1051	854	296	79
Sa-147	274	113	177	314	368
Sa-149	35200	372	646	646	646
Sa-150	261	261	261	261	261
Sa-151	217	174	174	172	165
Sa-152	1030	897	897	897	897
Bu-153	629	430	434	434	434
Bu-154	1320	362	308	342	162
Bu-155	12200	1189	1034	591	294
Gd-155	45100	23	596	2234	3334
Gd-157	208000	107	135	135	135

* (σ_a) (fission product weight)/(atomic weight)

XLACS-II를 사용하여 각 핵종별로 51군 핵단면적 자료를 생산하고 AJAX[15]에서 각 핵종의 핵단면적자료를 1개의 파일로 합치고 MALOCS [15]에 의해서 자료의 형식을 수정하여 NITAWL [15]에 입력시켰다.

공명영역의 단면적 보정은 그림 1의 NPTXS 코드 [11]를 사용하여 ENDF/B-IV에서 공명영역에서의 핵단면적을 분리하여 자기차폐 효과를 고려하여 산정할 수 있지만, 본 연구에서는 공명파라메타를 ENDF/B-IV에서 취해서 NITAWL에서 수행했다. 그림 1에서 GRPS는 BCD 형식인 에너지 군구조 자료를 바이너리 자료로 바꾸어 주는 역할을 수행한다.

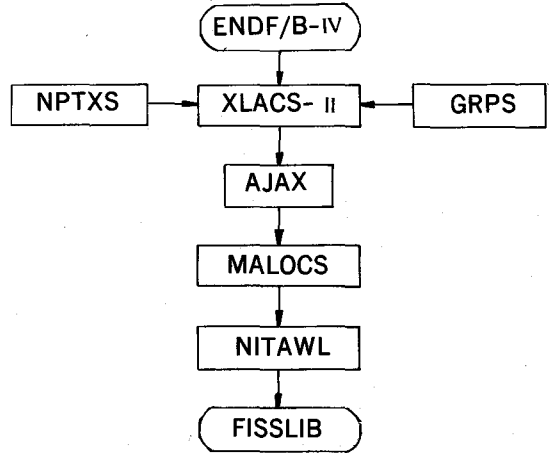


Fig. 1. Block diagram of generation procedure of nuclear group constant using XLACS.II.

III. FISSLIB 사용에시 및 결과

연소도를 고려한 사용후 핵연료의 핵임계도분석에 필요한 핵군단면적 생산과정은 그림 2와 같다. 그림 2의 MALOCS에서는 218군 핵단면적을 51군으로 중간 축약을 수행하게 되고 NITAWL에서는 자기차폐 효과를 고려하여 단면적을 보정하면서 FISSLIB에 수록될 자료를 DLC-43/CSRL에서 만든 자료와 결합시켰다. XSDRNP에서 51군 핵단면적을 표 3에서 보인 19군으로 공간의존 군축약을 수행, 핵임계도 분석에 적당한 군수의 핵군단면적을 생산하였다. 이와같이 생산된 핵군단면적을 KENO-IV[16]에 입력시켜 핵임계도를 계산했다.

열중성자 에너지(0.0253 eV)에서의 핵단면적값과 공명 영역인 0.5 eV와 20 MeV 구간에서의 공명적분을 BNL-325 [14, 17, 18] 및 ENDF/B-V 자료 [19]와 비교하여 표 4와 5에 각각 수록하였다. 열중성자 에너지에서의 핵단면적 값은 0.0253 eV가 49군과 50군 구간사이 값이므로 이 사이를 직선으로 가정해서 0.0253 eV에서의 핵단면적 값을 구해 냈다. 표 4에서 알 수 있듯이 열중성자 에너지 영역에서의 핵단면적은 Eu-153의 핵단면적을 제외하면 BNL-325의 오차범위내에 들어가며 ENDF/B-V 자료와도 잘 일치한다. Eu-153의

Table 3. Relative contribution of fission products to neutron absorption.

Group	Upper Energy (eV)
1	2.00E+7
2	3.00E+6
3	1.40E+6
4	9.00E+5
5	4.00E+5
6	1.00E+5
7	1.70E+4
8	3.00E+3
9	5.50E+2
10	1.00E+2
11	3.00E+1
12	1.00E+1
13	3.00E+0
14	1.00E+0
15	4.00E-1
16	1.00E-1
17	5.00E-2
18	3.00E-2
19	1.00E-1
20	1.00E-5

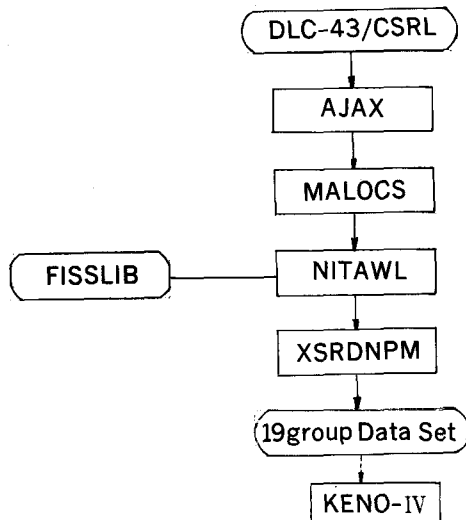


Fig. 2. Block diagram of generation procedure of group constants using DLC-43/CSRL and FISSLIB.

핵단면적은 BNL-325와 ENDF/B-IV 자료의 값은 서로 비슷하고 FISSLIB에 수록된 핵단면적은 이들과 큰 차이를 보여 주고 있다. 본 연구에서는 Eu-153의 단면적 자료를 ENDF/B-IV 파일에서 취하여 FISSLIB을 생산하였는데 ENDF/B-V에서 그것이 개선된 것으로 믿어진다.

표 5에는 공명적분 결과를 제시하였다. 공명적분은 가중함수에 따라 차이가 나기 때문에 개략적인 비교만 가능하다. 표 5에서 알 수 있는 바와 같이 Eu-154 및 Gd-157을 제외하면 대부분의 핵종에 대하여 BNL-325 및 ENDF/B-V 자료와 FISSLIB에 수록된 자료는 잘 일치한다. 본 연구에서 구한 Eu-154의 공명적분은 ENDF/B-V 자료와는 잘 일치하고 BNL-325와는 상당한 차이가

Table 4. Comparison of absorption cross section for fission products at thermal neutron energy.

Nuclides	Absorption Cross Section (barn)		
	BNL-325	ENDF/B-V	FISSLIB
Kr-83	180 ± 30	208	211
Mo-95	14.0 ± 0.5	14.5	14.7
Tc-99	20 ± 1	19.6	19.4
Pd-105	20 ± 3	14	14.2
Ru-101	3.4 ± 0.9	3.1	3.1
Rh-103	145 ± 2	147	151
Xe-131	85 ± 10	90	92
Ce-133	29.0 ± 1.5	30	30
Ce-134	140	140	142
Nd-143	325 ± 10	326	331
Nd-145	42 ± 2	42	43
Pm-147	168.4 ± 3.5	183	185
Sm-147	57 ± 3	64	66
Sm-149	40140 ± 600	40525	41810
Sm-150	104 ± 4	102	103
Sm-151	15200 ± 300	14900	15600
Sm-152	206 ± 6	207	210
Eu-153	312 ± 7	300	466
Eu-154	1340 ± 130	1493	1551
Eu-155	3950 ± 125	4052	4111
Gd-155	60900 ± 500	60500	61300
Gd-157	254000 ± 815	254000	255000

Table 5. Comparison of resonance integral for fission product nuclides.

Nuclides	Resonance Integral (barn)		
	BNL-325	ENDF/B-V	FISSLIB
Kr-83	183 ± 25	189	204
Mo-96	109 ± 5	113	114
Tc-99	340 ± 20	352	349
Pd-105	62.2	92	93
Ru-101	100 ± 20	100	95
Rh-103	1100 ± 50	1039	1067
Xe-131	900 ± 40	1018	881
Cs-133	437 ± 26	383	382
Cs-134	54.2	211	219
Nd-143	128 ± 30	132	146
Nd-145	240 ± 35	235	234
Pm-147	2064 ± 100	2286	2286
Sr-147	714 ± 50	762	762
Sr-149	3390	3256	3347
Sr-150	358 ± 50	321	325
Sr-151	3520 ± 160	3390	3519
Sr-152	2970 ± 100	3004	3005
Bu-153	1420 ± 100	1449	1547
Bu-154	802	2554	2585
Bu-155	2320 ± 300	1827	2072
Gd-155	1447 ± 100	1551	1638
Gd-157	700 ± 20	747	1223

난다. 이는 새로운 공명적분 자료의 도입 여부에서 기인할 수 있을 것으로 믿어진다. Gd-157 은

BNL-325 와 ENDF/B-V 자료는 비슷하고 FISSLIB 에 수록된 값은 이들과 큰차이를 보여 준다. 이것은 이 핵종에 대한 공명영역의 단면적이 ENDF/B-V 에서 개선된 것으로 믿어진다.

전술한 3개의 핵종을 제외하고 나머지 핵종의 핵단면적을 이용하여 35000 MWD/MTU 의 연소도를 갖는 무한배열 고리 1 호기 사용후 핵연료봉의 핵임계도를 KENO-IV 전산코드로 산출했다. 이때 사용후 핵연료의 냉각기간은 0, 1, 5 및 10 년으로 하고 핵연료봉간의 간격을 1.412 cm 로 가정하였고, 핵분열 생성물 핵종을 고려하였을 때와 무시했을 경우의 핵임계도 값을 표 6 에 수록했다. 그리고 고려 대상 핵연료를 신연료로 가정하였을 때 핵임계도는 1.39561 ± 0.00354 로 나타났다.

IV. 결 론

ENDF/B-IV 자료를 입력으로 하여 DLC-43/CSRL 에 수록되지 않은 사용후 핵연료내 핵분열 생성물중 핵임계도에 영향을 주는 22개 핵종의 51 군 핵단면적을 생산하고 열중성자 및 공명영역의 BNL-325 및 ENDF/B-V 자료와 비교하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 최근에 수정되었을 것으로 믿어지는 Eu-153, Eu-154 및 Gd-157 핵종을 제외하면 ENDF/B

Table 6. Calculated K_{eff} of KORI-1 spent fuel rods infinitely arranged.

Cooling Time (Year)	K_{eff}		$(K_{eff} \pm \sigma)_1 - (K_{eff} \pm \sigma)_2$
	Including Fission Product Nuclides $(K_{eff} \pm \sigma)_1$	excluding Fission Product Nuclides $(K_{eff} \pm \sigma)_2$	
0	1.03958 ± 0.00472 $(1.39561 \pm 0.00354)^*$	0.94985 ± 0.00348	0.08873 ± 0.00575
1	1.04047 ± 0.00524	0.91284 ± 0.00340	0.12674 ± 0.00625
5	1.02354 ± 0.00438	0.88514 ± 0.00381	0.13835 ± 0.00581
10	0.99738 ± 0.00435	0.86298 ± 0.00347	0.13443 ± 0.00558

* Calculated K_{eff} of KORI-1 fresh fuel.

-IV 자료를 입력으로 하여 직접 생산한 핵군단면적은 BNL-325 및 ENDF/B-V 자료와 잘 일치한다.

2. 사용후 핵연료중에 들어 있는 핵분열 생성물 핵종을 고려하면 핵임제도는 감소한다. 예를 들면 고리 1호기 사용후 핵연료를 수중에 무한배열로 저장한다고 할 때 핵분열 생성물 핵종을 고려하면 핵임제도는 그것을 무시할 경우보다 냉각기간에 따라 9-14% 낮다.

참고문헌

1. B. F. Cooney, T. R. Freeman, and M. H. Lipner, "Comparisons of experiments and calculations for LWR storage geometries, " *Trans. Am. Nucl. Soc.* **39**, 531(1981).
2. S.R. Bierman and E.D. Clayton, "Criticality experiments with subcritical clusters of 2.35 and 4.31 wt% U-235 enriched UO₂ rods in water with steel reflecting walls, " *Nucl. Tech.*, **54**, 131(1980).
3. Thomas L. Sanders, "Burnup credit in the design of spent fuel shipping casks, " *Trans. Am. Nucl. Soc.*, **55**, 391-392(1987)
4. W.A. Boyd, "Determining burnup credit requirements in spent fuel storage racks using reactivity equivalencing, " *Trans. Am. Nucl. Soc.*, **55**, 393(1987).
5. 이창건의, "사용후 핵연료 중간저장에 관한 연구, " KRC-84 N-T 18(1985).
6. 박현수의, "사용후 핵연료 저장용기 개발, " KAERI/RR-168/87(1987).
7. W.E. Ford, III, *A 218 Group Neutron Cross-section Library in the AMPX Master Interface Format for Criticality Safety Studies*, Oak Ridge National Laboratory Report, ORNL/CSD/TM-4(1976).
8. U.C. Lee, Test and Verification of CDC Criticality Related Production Codes, (1978).
9. R. Kinsey, ENDF/B Summary Documentation, BNL-NCS-17541(ENDF-201), 3rd Edition, (ENDF/B-V) (1979).
10. W.E. Ford, III "CSRL-V : A ENDF/B-V 227-group cross section library for criticality safety studies, " *Trans. Am. Nucl. Soc.*, **34**, 331(1980).
11. D. Garber et al, ENDF-102 Data Format and Procedures Evaluated Nuclear Data File, ENDF BNL-NCS-50496(1975).
12. Allen G, Croff, *ORIGEN-2 A Revised and Update Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code*, Oak Ridge National Laboratory Report, ORNL-5621(1980).
13. M. Benedict, T. H. Pogford and H. W. Levi, *Nuclear Chemical Engineering*, PP 363-367, McGraw-Hill Book Co. New York (1981).
14. S.F. Mughabghab and D.I. Garber, *Neutron Cross Section, Vol. 1, Resonance Parameters*, BNL 325, Brookhaven National Laboratory(1973).
15. N.M. Greene, AMPX : A Modular Code System for Generating Coupled Multigroup Neutron-Gamma Libraries for ENDF/B, Oak Ridge National Laboratory Report ORNL/TM-3706(1976).
16. L.M. Petrie and N.F. Cross, *KENO-IV : An Improved Monte Carlo Criticality Program*, Oak Ridge National Laboratory Report, ORNL-4938(1970).
17. S. F. Mughabghab and D.I. Garber, *Neutron Cross Section (Vol 1, Resonance Parameters and Thermal Cross Section, Part A, Z = 1, 60)*, Academic Press, Inc., New York(1981).

18. S. F. Mughabghab, M. Divadenam, and N. E. Holden, *Neutron Cross Section (Vol 1, Resonance Parameters and Thermal Cross Section, Part B, Z = 61, 100)*, Academic Press, Inc., New York(1981).
19. T.R.Egland, *Summary of ENDF/B-V Data for Fission Products and Actinides*, Los Alamos National Laboratory Report, NP-3787(1984).

Generation of Group Constant of Fission Product for Criticality Analysis of Spent Fuel

H. S. Shin, B. I. Choi, J. M. Park and S. G. Ro.
Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon, Korea.

ABSTRACT

A FISSLIB, 51 group nuclear data set for 22 product nuclides, which are present in spent fuel and significantly affect the criticality of spent fuel, was generated from ENDF/B-IV using XLACS-II. The FISSLIB is ready to be used together with a data set generated from DLC-43/CSRL using AMPX system.

The reliability of FISSLIB was verified by comparison with the data reported in BNL-325. Using FISSLIB, the criticality of KORI-1 spent fuel rod arranged infinitely was analyzed, and it was found that K_{eff} of the spent fuel including fission products was lower by 9-14% than that calculated without fission products.