2003 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

# 핵분열 생성물의 중성자 반응 단면적 비교 및 연소도에 따른 동위원소 조성 분석

# Comparison of Neutron Cross Sections for Selected Fission Products and Isotopic Composition Analyses with Burnup

김도헌, 길충섭, 김정도, 장종화, 이용덕
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

## 요 약

한국원자력연구소와 미국 Brookhaven 국립 연구소 간의 국제 공동 연구를 통해 새롭게 평가된 18종의 중요 핵분열 생성물들에 대한 중성자 흡수 단면적을 기존의 ENDF/B-VI.7과 비교하였다. 또한, OECD/NEA의 연소에 따른 임계도 (burnup credit criticality) 벤치마크 문제와 LWR-Pu 재순환 (recycling) 벤치마크 문제에 대하여 연소도에 따른 핵분열 생성물들의 동위원소 조성을 계산하여 새롭게 평가된 핵자료에 의한 영향을 살펴보았다. 계산에는 WIMSD-5B 코드가 사용되었고, 각각의 평가 핵자료는 WIMS-D용 69군 라이브러리로 처리되었다. 계산 결과, 열중성자 영역을 포함한 공명 역역까지 평가되었던 1단계 평가 핵자료 (ENDF/B-VI.8)는 기존의 핵자료에 비해 Xe-131에서 최대 4.78%의 조성 차이를 보였다. 반면, 상위 (upper) 공명 이상의 영역에서 평가된 2단계 평가 핵자료 (ENDF/B-VII에 포함될 예정)는 흡수 단면적에서는 비교적 큰 차이를 보였지만 절대 단면적이 작기 때문에 동위원소 조성에는 거의 영향을 미치지 않았다.

## Abstract

The neutron absorption cross sections for 18 fission products evaluated within the framework of the KAERI-BNL international collaboration have been compared with the ENDF/B-VI release 7. Also, the influence of the new evaluations on isotopic compositions of the fission products as a function of burnup has been analyzed through the OECD/NEA burnup credit criticality benchmarks (Phase 1B) and the LWR/Pu recycling benchmarks. These calculations were performed by WIMSD-5B with the 69 group libraries prepared from three evaluated nuclear data libraries: ENDF/B-VI.7, ENDF/B-VI.8 including new evaluations in resonance region covering thermal region, and ENDF/B-VII expected including those in upper resonance region up to 20 MeV. For Xe-131, the composition calculated with ENDF/B-VI.8 shows maximum difference of 4.78% compared to ENDF/B-VI.7. However, the isotopic compositions of all fission products calculated with ENDF/B-VII shows no differences compared to ENDF/B-VI.7.

## 1. 서 론

핵분열 생성물에 대한 중성자 반응 단면적은 원자로내 연소 성능 예측, 사용후 핵연료 저장소 설계를 위한 임계도 계산, 고성능 핵연료의 설계, 구조 재료의 방사선 손상 평가 등 다양한 분야에 사용되고 있으며 그 중요성이 점점 커지고 있다. 한국원자력연구소 핵자료평가랩과 미국 Brookhaven 국립 연구소 (Brookhaven National Laboratory, BNL)의 National Nuclear Data Center (NNDC)는 국제 공동 연구를 통해 20 ~ 30년 이상 자료의 갱신 없이 사용되어 온 ENDF/B-VI의 일부 핵분열 생성물들에 대한 중성자 반응 단면적을 새롭게 재평가하였다.[1,2,3]

본 연구에서는 새롭게 평가된 핵분열 생성물들 중 18종 (Pr-141 제외)에 대한 중성자 흡수 단면적을 기존의 ENDF/B-VI.7 라이브러리와 비교해 보고자 하였다. 또한, 새롭게 평가된 핵자료가 연소 임계도 벤치마크 계산을 통해 얻은 연소도에 따른 핵분열 생성물들의 동위원소 조성 계산에 미치는 영향을 살펴보고자 하였다. 벤치마크 계산에는 WIMS-D Library Update Project (WLUP)[4]의 핵자료 처리 절차에 따라 생산된 라이브러리를 사용한 WIMSD-5B 코드[5]를 통해 수행되었다.

2장에서는 새롭게 재평가된 핵분열 생성물들의 평가 핵자료와 WIMS-D용 라이브러리 생산을 간단히 소개하였다. 또한, 핵분열 생성물들에 대한 중성자 흡수 단면적의 상호 비교 결과를 기술하였다. 3장에서는 벤치마크 계산 결과를 논의하였고, 본 연구의 내용을 4장에 요약하였다.

## 2. 핵분열 생성물 평가 핵자료

### *2.1. 평가 핵자료*

중성자 평가 핵자료는 원자로 설계 및 안전 해석 등 원자력 전 분야에 있어서 중요한 역할을 담당하고 있다. 특히, 보다 상세한 원자로심 해석을 수행하기 위해 핵분열 생성물 평가 핵자료에 대한 수요가 증가하고 있다. 그러나, 현재 여러 분야에서 사용되고 있는 핵분열 생성물에 대한 ENDF/B-VI 평가 핵자료는 최근 측정된 실험 자료를 충분히 반영하지 못하고 있으며, 그들 중 대다수의 핵종들이 오래된 실험 자료에 근거하여 1970 ~ 80년대에 걸쳐 평가된 자료들이다.

한국원자력연구소 핵자료평가랩과 미국 BNL의 NNDC는 1998년부터 국제 공동 연구에 착수, 핵임계 안전 및 수송 분야에서 특히 중요한 19종의 핵분열 생성물들에 대한 핵자료를 최근의 실험 자료에 근거한 재평가를 실시하여 중성자 반응 자료의 정확도를 향상시키고자 하였다. 표 1은 여기서 선정된 19종의 핵분열 생성물들에 대한 ENDF/B-VI 라이브러리의 핵자료 평가 현황을 보여주고 있다.

이 공동 연구는 크게 두 단계에 걸쳐 진행되었다. 2000년에 종료된 1단계 평가에서는 총 19종 중 Cs-133, Sm-149, Eu-153 등 3종을 제외한 16종의 핵종에 대하여 열중성자 영역을 포함한

공명 영역에서 핵자료 평가가 수행되었고,[1] 평가된 자료는 ENDF/B-VI.8에 채택되어 발표되었다. 최근에 종료된 2단계 평가에서는 총 19종의 핵종에 대하여 상위 공명 영역부터 20 MeV의 고속중성자 영역에 걸쳐 핵자료의 평가가 수행되었고,[2,3] 평가된 자료는 2005년에 공개될 예정인 ENDF/B-VII에 포함하기로 결정되었다. 참고로, 2단계 평가 핵종들 중 Tc-99, Eu-153, Gd-157 등 3종은 공동 연구 성격상 미국 BNL에서 평가되었다.

*2.2. WIMS-D용 라이브러리 생산*

WIMSD-5B 코드는 열중성자로 노물리 격자 계산 코드로서 누구나 자유롭게 사용할 수 있도록 공개되어 있다. 이 코드는 비교적 우수한 성능을 지닌 반면 매우 오래된 핵자료에 근거한 다군 군정수를 사용한다는 단점을 지니고 있다. 따라서, 이러한 단점을 보완하고 코드의 성능을 보다 향상시키기 위해서 최근에 평가된 핵반응 자료에 근거한 라이브러리로 새롭게 업데이트 해야 할 필요성이 제기되었다. 이에 국제원자력기구 (IAEA)의 주도하에 WIMS-D Library Update Project (WLUP)가 1990년대 초반에 착수되어 2001년 말 종료된 바 있다.

본 연구에서는 핵분열 생성물들에 대한 중성자 흡수 단면적의 비교 및 연소도에 따른 동위원소 조성을 계산하기 위해 WLUP의 핵자료 처리 절차에 따라 69군 WIMSD-5B 코드용 중성자 라이브러리를 생산하였다. 모든 핵종들에 대한 기준 평가 핵자료로는 ENDF/B-VI.8을 사용하였고, 새롭게 평가된 18종의 핵분열 생성물들에 대한 핵자료 만을 ENDF/B-VI.7과 ENDF/B-VII의 평가 핵자료로 대체해 주었다. 핵자료 처리 코드로는 NJOY99.81[6]을 사용하였고, WIMS-D 라이브러리의 69군 에너지 구조를 표 2에 수록하였다.

그림 1 ~ 18에서 ENDF/B-VI.7, ENDF/B-VI.8, ENDF/B-VII에 근거하여 처리된 18종의 핵분열 생성물들에 대한 69군 흡수 단면적을 비교하였다. 각각의 그림에는 ENDF/B-VI.7 및 ENDF/B-VII 라이브러리들의 ENDF/B-VI.8에 대한 비 (ratio)를 함께 표시하여 각각의 라이브러리들에 대한 상대적인 차이를 쉽게 파악할 수 있도록 하였다. 앞서 언급한 바와 같이, ENDF/B-VI.7과 ENDF/B-VI.8은 일부 핵종을 제외하면 대체로 열중성자 및 하위 (lower) 공명 에너지 영역에서 서로 차이를 보이고 있으며, ENDF/B-VI.8과 ENDF/B-VII은 상위 공명 이상의 에너지 영역에서 비교적 큰 차이를 보이고 있다.

WIMS-D 코드가 주로 사용되고 있는 열중성자로에서는 100 eV 이하의 열중성자 및 하위 공명 에너지 영역에서의 중성자속이 크기 때문에, 라이브러리들을 서로 비교할 때 이 영역에서의 흡수 단면적 차이가 클 경우 벤치마크 계산 결과에 영향을 줄 수도 있다. 즉, Mo-95, Tc-99, Rh-103, Pd-105, Xe-131, Nd-145, Sm-147 등은 이 영역에서 ENDF/B-VI.7과 ENDF/B-VI.8 간에 약 20 ~ 50% 정도의 큰 차이를 보이고 있다. 여기서, Mo-95, Rh-103, Sm-147 등은 약 20% 이상의 큰 차이를 보이고 있는 에너지 구간에서 중성자 흡수 단면적이 수십 barns 이하로 작기 때문에 계산 결과에 미치는 영향이 작을 것으로 여겨진다. 반면, Tc-99, Pd-105, Xe-131, Nd-145 등은 이 구간에서 수백 barns 이상의 흡수 단면적을 지니고 있어 계산 결과에 비교적 큰 영향을 미칠 것으로 예상된다. 특히, Xe-131은 약 15%의 차이를 보이는 26군에서의 흡수 단면적이 약 1500 barns로 가장 큰 영향을 미칠 것으로 예상된다.

## 3. 벤치마크 계산

WLUP에서는 업데이트된 WIMS-D 라이브러리의 검증을 위해 많은 벤치마크 문제를 준비해 놓았다. 이들 중 악티나이드 및 핵분열 생성물들의 동위원소 조성을 계산할 수 있는 OECD/NEA 연소도 벤치마크 문제와 LWR-Pu 재순환 벤치마크 문제에 대한 WIMSD-5B 코드 계산을 수행하였다.[4]

### *3.1. OECD/NEA Burnup Credit Criticality Benchmark (Phase 1B)*

본 벤치마크 문제는 경수 감속 $UO_2$ pin cell에 대한 격자 계산을 통해 산출된 연소도에 따른 핵종 조성을 실험값과 비교, 검증하기 위해 마련되었다. 각각의 핵종 조성은 27.35, 37.12, 44.34 GWd/tU 등 3종류의 누적 연소도에서 계산되었다.

ENDF/B-VI.7과 ENDF/B-VI.8을 사용한 벤치마크 계산 결과와 실험값과의 차이를 비교하면 두 라이브러리 간에는 큰 차이를 보이지 않음을 알 수 있었다. 가장 큰 차이를 보인 핵종은 Nd-145로서 44.34 GWd/tU의 연소도에서 ENDF/B-VI.8이 ENDF/B-VI.7에 비해 실험값을 약 1.8% 정도 낮게 예측하였다. 핵종의 조성 계산에 가장 큰 영향을 미칠 것으로 예상되었던 Xe-131은 실험값이 존재하지 않아 실험값과 직접 비교할 수 없었다.

그림 19는 ENDF/B-VI.7을 사용하여 계산된 동위원소 조성이 ENDF/B-VI.8을 사용하여 계산된 조성에 대하여 나타내는 상대적인 차이 (%)를 보여주고 있다. 앞서 언급한 대로 Tc-99, Pd-105, Xe-131, Nd-145 핵종들의 조성이 두 라이브러리 간에 상대적으로 큰 차이를 보임을 알 수 있다. 특히, Xe-131은 44.34 GWd/tU의 연소도에서 –4.45%의 차이를 보였다. 두 라이브러리 간 핵종 조성의 차이는 누적 연소도가 증가함에 따라 점차적으로 커지는 경향을 보이고 있다.

### *3.2. LWR-Pu Recycling Benchmark*

본 벤치마크 문제는 경수 감속 MOX pin cell에 대한 격자 계산을 통해 산출된 핵종 조성을 수치적으로 검증하기 위해 마련되었으며, highly degraded plutonium과 normal PWR recycled plutonium을 사용한 두 가지 경우에 대해 계산이 수행되었다. 두 가지 경우 모두 누적 연소도는 50 GWd/tU이다.

그림 19에서 보는 바와 같이, 본 벤치마크 계산 결과는 OECD/NEA 벤치마크 계산 결과와 매우 유사한 경향을 보였다. 즉, Tc-99, Pd-105, Xe-131, Nd-145 핵종들의 조성이 두 라이브러리 간에 비교적 큰 차이를 보였다. 특히, Xe-131은 normal PWR recycled Pu를 사용한 경우에 –4.78%의 최대 차이를 보였는데, 이는 본 벤치마크 문제가 OECD/NEA 벤치마크 문제에 비해 누적 연소도가 약간 증가했기 때문에 나타난 것으로 판단된다.

## 4. 요약 및 검토

한국원자력연구소와 미국 BNL 간의 국제 공동 연구를 통해 새롭게 평가된 18종의 중요 핵분열 생성물들에 대한 중성자 흡수 단면적을 기존의 ENDF/B-VI.7 라이브러리와 비교하였다. 흡수 단면적 비교 및 연소도에 따른 핵분열 생성물들의 동위원소 조성 계산을 위해 각각의 평가 핵자료를 WIMSD-5B 코드용 69군 중성자 라이브러리로 처리하였다. ENDF/B-VII에 수록될 예정인 2단계 평가 핵자료는 상위 공명 영역 이상의 높은 에너지에서 수행되었기 때문에 열중성자로 계산에서는 그 영향이 무시할 정도로 작게 나타났다. 반면, ENDF/B-VI.8에 수록된 1단계 평가 핵자료는 열중성자 및 하위 공명 영역의 핵반응 단면적이 수정되었기 때문에 연소도 벤치마크 계산에서 기존의 ENDF/B-VI.7과 차이를 보였다. 특히, Xe-131은 흡수 단면적이 약 1500 barns인 26군에서 두 라이브러리 간에 약 15%의 차이를 보였다. 이러한 두 라이브러리 간의 차이는 벤치마크 계산에 비교적 큰 영향을 미쳤다. 즉, OECD/NEA 벤치마크 문제에서는 –4.45%, LWR-Pu 재순환 벤치마크 문제에서는 –4.78%의 비교적 큰 조성 차이를 보였다. 따라서, 연소도 계산에서 보다 정확한 Xe-131 핵종 조성을 예측하기 위해서는 평가 핵자료 간 차이를 충분히 검토해 보아야 할 것으로 판단된다.

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 중·장기계획사업 중 “원자력 연구개발용 핵자료 구축·평가” 과제의 일환으로 수행되었음.

## 참고문헌

1. S.Y. Oh and J.H. Chang, “Neutron Cross Section Evaluations of Fission Products below the Fast Energy Region,” BNL-NCS-67469 (KAERI/TR-1511/2000), Brookhaven National Laboratory (2000).
2. Y.D. Lee and J.H. Chang, “Neutron Cross Section Evaluation on Mo-95, Tc-99, Ru-101 and Rh-103 in the Fast Energy Region,” J. of the Korean Nuclear Society, **34**, 533 (2002).
3. Y.D. Lee and J.H. Chang, “Evaluation of Neutron Cross Sections for Eu-153, Gd-155 and Gd-157,” J. of the Korean Nuclear Society, **35**, 35 (2003).
4. “WIMS-D Library Updata: Final Report of a Co-Ordinated Research Project,” IAEA-DOC-DRAFT, IAEA (2002).
5. J.R. Askew, F.J. Fayers, and P.B. Kemshell, “A General Description of the Lattice Code WIMS,” J. British Nuclear Energy Society, **5**, 564 (1966).
6. R.E. MacFarlane and D.W. Muir, “The NJOY Nuclear Data Processing System, Version 91,” LA-12740-M, Los Alamos National Laboratory (1994).

Table 1. List of Selected Fission Product Nuclides

| Fission Product | ENDF/B-VI Evaluation Date | ENDF/B-VI.7 (2000) | ENDF/B-VI.8 (2001) | ENDF/B-VII (to be released) |
|---|---|---|---|---|
| 42-Mo-95 | 1990 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |
| 43-Tc-99 | 1978 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |
| 44-Ru-101 | 1980 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |
| 45-Rh-103 | 1978 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |
| 46-Pd-105 | 1989 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |
| 47-Ag-109 | 1983 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |
| 54-Xe-131 | 1978 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |
| 55-Cs-133 | 1978 | Re-evaluation | - | Upper Resonance ~ Fast |
| 59-Pr-141 | 1980 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |
| 60-Nd-143 | 1974 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |
| 60-Nd-145 | 1980 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |
| 62-Sm-147 | 1988 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |
| 62-Sm-149 | 1978 | Re-evaluation | - | Upper Resonance ~ Fast |
| 62-Sm-150 | 1980 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |
| 62-Sm-151 | 1989 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |
| 62-Sm-152 | 1980 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |
| 63-Eu-153 | 1986 | Re-evaluation | - | Upper Resonance ~ Fast |
| 64-Gd-155 | 1977 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |
| 64-Gd-157 | 1977 | - | Thermal ~ Resonance (MF=2) | Upper Resonance ~ Fast |

Table 2. 69 Energy Group Structure

| Fast Groups | | Resonance Groups | | Thermal Groups | |
|---|---|---|---|---|---|
| Group | Upper Bound (eV) | Group | Upper Bound (eV) | Group | Upper Bound (eV) |
| 1 | 1.0000E+07 | 15 | 9.1180E+03 | 28 | 4.0000E+00 |
| 2 | 6.0655E+06 | 16 | 5.5300E+03 | 29 | 3.3000E+00 |
| 3 | 3.6790E+06 | 17 | 3.5191E+03 | 30 | 2.6000E+00 |
| 4 | 2.2310E+06 | 18 | 2.2394E+03 | 31 | 2.1000E+00 |
| 5 | 1.3530E+06 | 19 | 1.4251E+03 | 32 | 1.5000E+00 |
| 6 | 8.2100E+05 | 20 | 9.0690E+02 | 33 | 1.3000E+00 |
| 7 | 5.0000E+05 | 21 | 3.6726E+02 | 34 | 1.1500E+00 |
| 8 | 3.0250E+05 | 22 | 1.4873E+02 | 35 | 1.1230E+00 |
| 9 | 1.8300E+05 | 23 | 7.5501E+01 | 36 | 1.0970E+00 |
| 10 | 1.1100E+05 | 24 | 4.8052E+01 | 37 | 1.0710E+00 |
| 11 | 6.7340E+04 | 25 | 2.7700E+01 | 38 | 1.0450E+00 |
| 12 | 4.0850E+04 | 26 | 1.5968E+01 | 39 | 1.0200E+00 |
| 13 | 2.4780E+04 | 27 | 9.8770E+00 | 40 | 9.9600E-01 |
| 14 | 1.5030E+04 | | | 41 | 9.7200E-01 |
| | | | | 42 | 9.5000E-01 |
| | | | | 43 | 9.1000E-01 |
| | | | | 44 | 8.5000E-01 |
| | | | | 45 | 7.8000E-01 |
| | | | | 46 | 6.2500E-01 |
| | | | | 47 | 5.0000E-01 |
| | | | | 48 | 4.0000E-01 |
| | | | | 49 | 3.5000E-01 |
| | | | | 50 | 3.2000E-01 |
| | | | | 51 | 3.0000E-01 |
| | | | | 52 | 2.8000E-01 |
| | | | | 53 | 2.5000E-01 |
| | | | | 54 | 2.2000E-01 |
| | | | | 55 | 1.8000E-01 |
| | | | | 56 | 1.4000E-01 |
| | | | | 57 | 1.0000E-01 |
| | | | | 58 | 8.0000E-02 |
| | | | | 59 | 6.7000E-02 |
| | | | | 60 | 5.8000E-02 |
| | | | | 61 | 5.0000E-02 |
| | | | | 62 | 4.2000E-02 |
| | | | | 63 | 3.5000E-02 |
| | | | | 64 | 3.0000E-02 |
| | | | | 65 | 2.5000E-02 |
| | | | | 66 | 2.0000E-02 |
| | | | | 67 | 1.5000E-02 |
| | | | | 68 | 1.0000E-02 |
| | | | | 69 | 5.0000E-03 |
| | | | | | 1.0000E-05 |

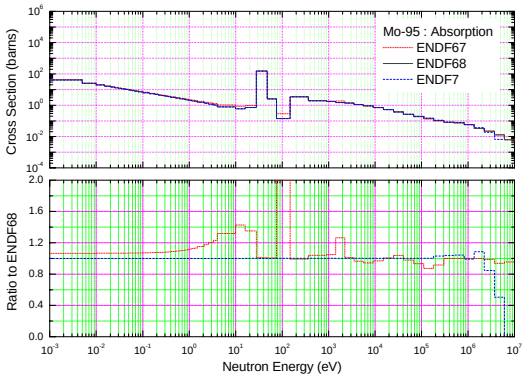


Figure 1. Absorption Cross Section of Mo-95

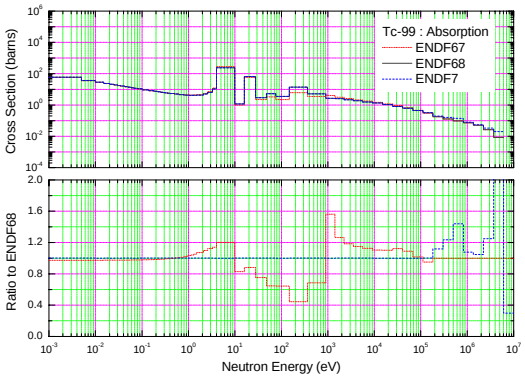


Figure 2. Absorption Cross Section of Tc-99

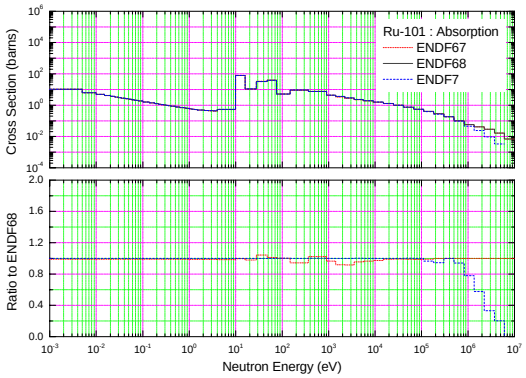


Figure 3. Absorption Cross Section of Ru-101

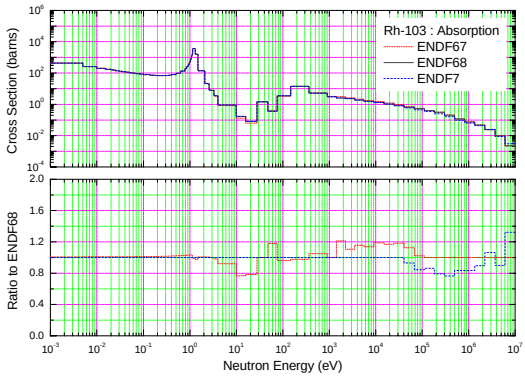


Figure 4. Absorption Cross Section of Rh-103

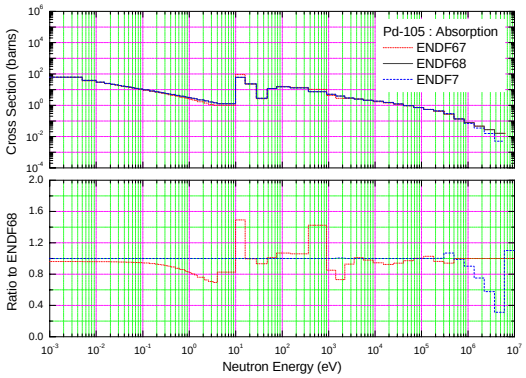


Figure 5. Absorption Cross Section of Pd-105

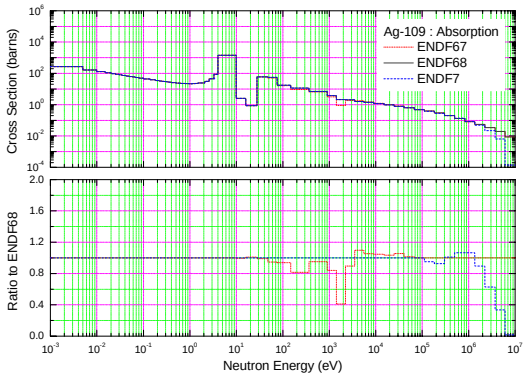


Figure 6. Absorption Cross Section of Ag-109

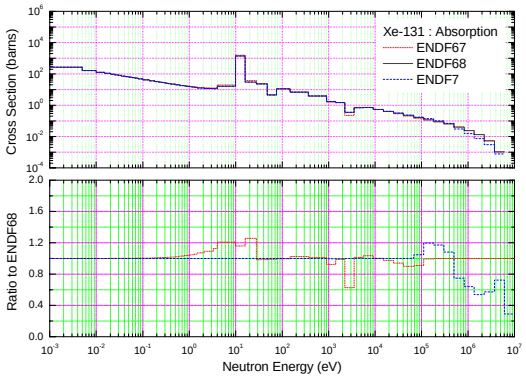


Figure 7. Absorption Cross Section of Xe-131

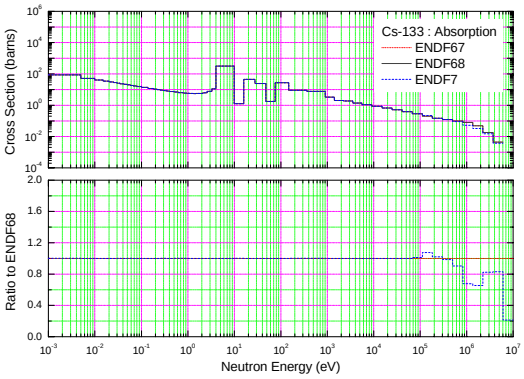


Figure 8. Absorption Cross Section of Cs-133

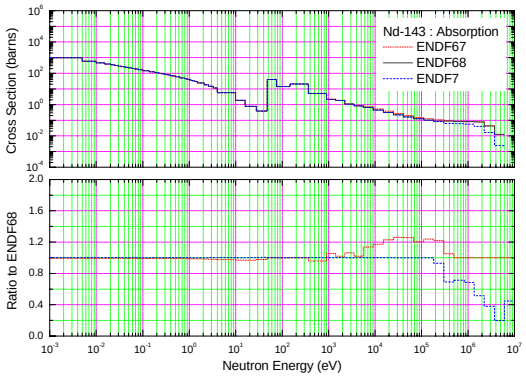


Figure 9. Absorption Cross Section of Nd-143

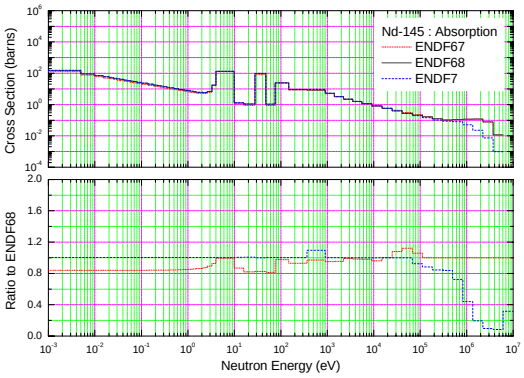


Figure 10. Absorption Cross Section of Nd-145

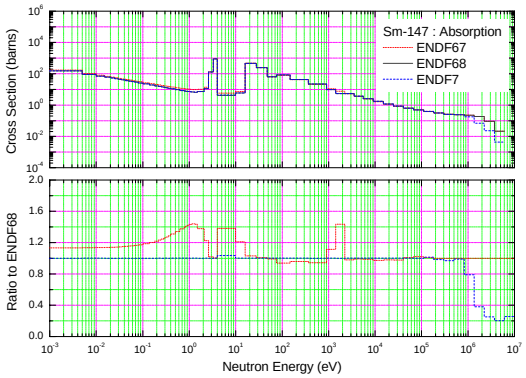


Figure 11. Absorption Cross Section of Sm-147

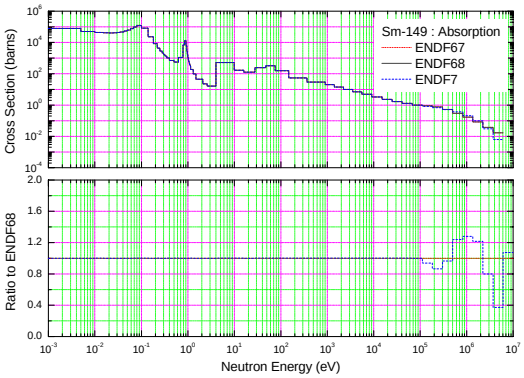


Figure 12. Absorption Cross Section of Sm-149

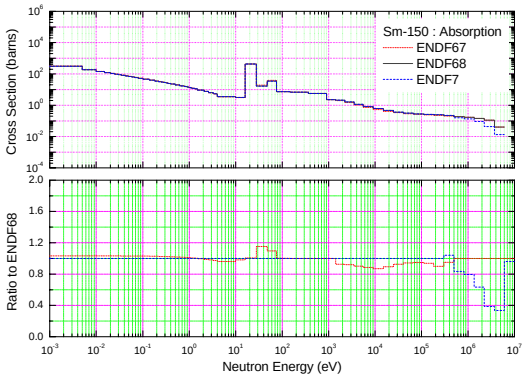


Figure 13. Absorption Cross Section of Sm-150

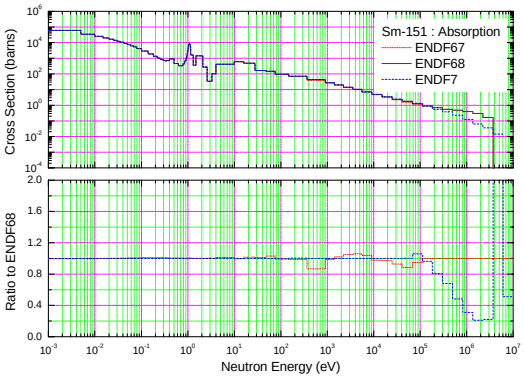


Figure 14. Absorption Cross Section of Sm-151

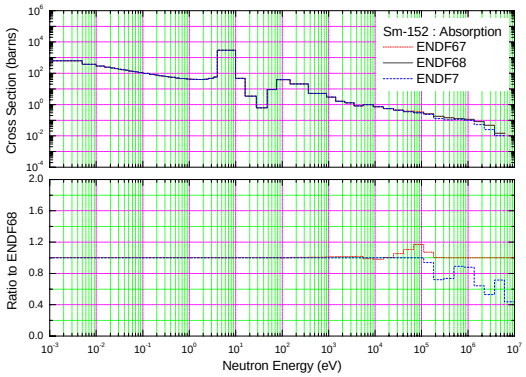


Figure 15. Absorption Cross Section of Sm-152

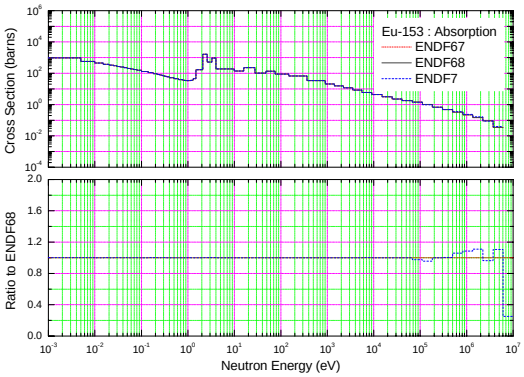


Figure 16. Absorption Cross Section of Eu-153

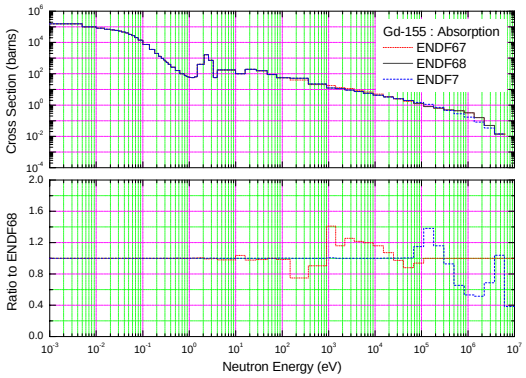


Figure 17. Absorption Cross Section of Gd-155

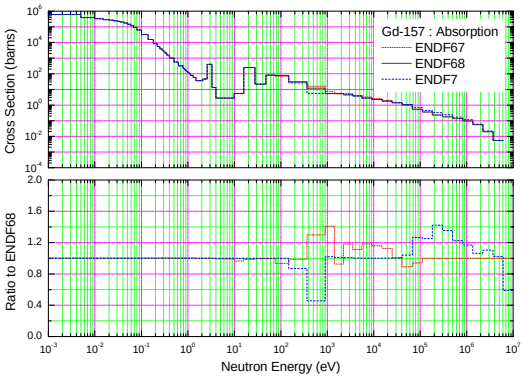


Figure 18. Absorption Cross Section of Gd-157

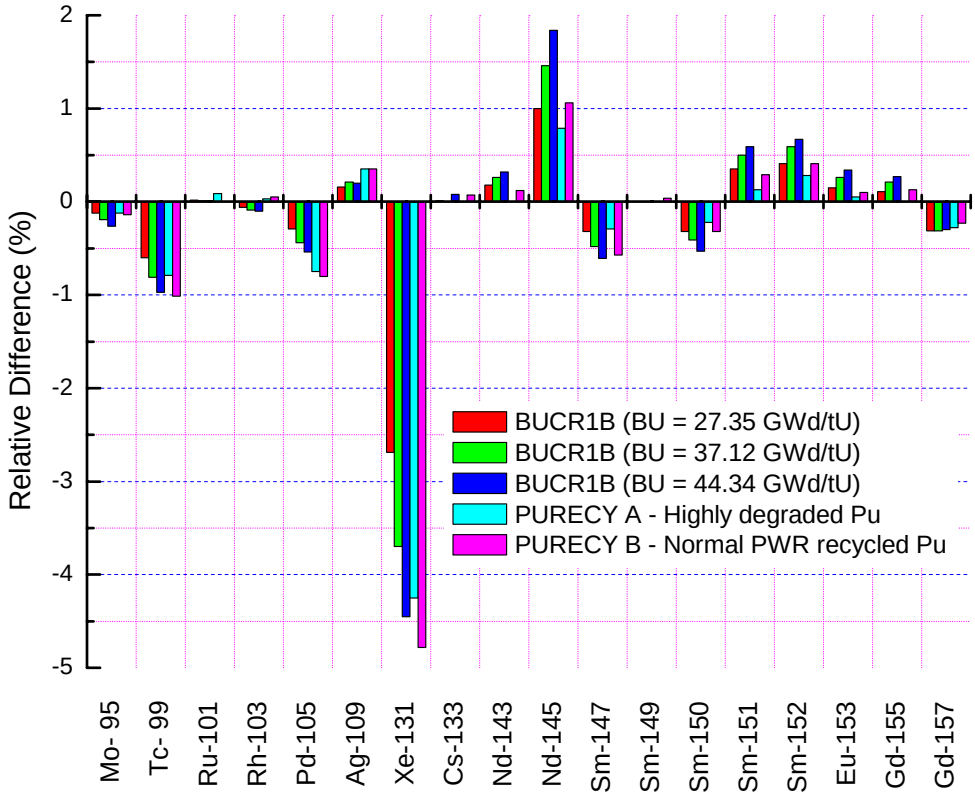


Figure 19. Relative Difference of ENDF/B-VI.7 to ENDF/B-VI.8 in Isotopic Compositions