

감마스캐닝을 이용한 고연소도 핵연료의 반경방향 연소도 분포 측정

Radial Burnup Distribution Measurement of The High-Burnup Fuel Using The Gamma Scanning Method

권형문, 엄성호, 서항석, 민덕기, 전용범
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

Cs-137 핵종은 연료봉 축방향 연소도 분포를 측정할 때, 중요한 지표가 된다. 연료봉 반경방향 감마스캐닝 결과, Cs-137 핵종은 연소중 펠렛 외곽으로 이동한 것으로 보인다. 이 때문에 Cs-137로는 반경방향 연소도 분포 예측이 어렵다. 이 연구에서는 감마스캐닝에 의한 반경방향 연소도 분포 측정 지표 핵종으로 비활성 핵분열 생성물인 Ru-106을 제안하였다. Ru-106 핵종의 연소도에 선형적인 관계를 보여주지 않기 때문에 Origen-S 코드에 의한 보정이 필요하다.

Abstract

In the measurement of the axial rod burnup distribution, Cs-137 is the most important fission product. It was found that some percentages of cesium migrated to the outer pellet region in the result of radial gamma-scanning. Accordingly, the estimation of the radial burnup distribution is difficult, if Cs-137 gamma spectrum is used in this estimation. It is proposed, therefore, that Ru-106, nonvolatile fission product, is the index nuclide of the radial burnup distribution in this paper. Because of the nonlinear relation between generation weight of Ru-106 and burnup, calibration on the Ru-106 gamma spectrum is required using Origen-S code.

1. 서론

핵연료 설계의 중요한 요소 중에 하나는 정확한 핵분열기체 방출량을 예측하는 것이다. 플레넴으로 방출된 핵분열 기체는 연료봉 내부압력 증가에 직접적인 영향을 주게 되고 펠렛에 잔류하고 있는 핵분열 기체는 연료의 스웰링에 기여하여 PCI(Pellet-Cladding Interaction)을 유발시키게 된다. 특히 고연소도 장주기 핵연료에 대한 요구가 증대되면서 여전히 논의의 대상이 되고 있는 HBS(High Burnup Structure)와 고연소도 핵분열기체 방출 특성은 더 향상된 연구/실험방법을 필요로 하게 되었다.

핵분열 기체 모델은 핵연료 반경방향으로 영역을 나누고 각 영역에서의 핵분열기체 방출량을 합산하는 방식으로 개발되어 왔다. 이런 모델을 검증하고 개선하기 위해서는 펠렛의 반경방향 핵종분포에 대한 측정 자료가 필요하다[1]. 현재 반경방향 핵종분포를 측정하는 방법으로는 EPMA(Electron Probe MicroAnalyser), XRF(X-ray Fluorescence Analysis), 감마스캐닝이 있다. EPMA로 Xe를 측정할 경우, 표면에서 $1\mu\text{m}$ 투과깊이 이내의 closed porosity와 UO_2 grain에 있는 Xe만 측정이 가능하기 때문에 기포 크기 분포에 대한 정확한 정보가 필요하며, 표면효과를 최소화하기 위한 특별한 핵연료 시편처리 기술이 필요하다[2]. 또한 이 방법은 각 핵종의 동위원소를 분리하여 측정하는 것은 불가능하다. XRF 방법은 $18\mu\text{m}$ 정도의 투과깊이를 갖고 있기 때문에 intergranular bubble과 grain boundary에 잡혀있는 핵분열 기체 핵종을 포함한 기체의 농도를 측정할 수는 있으나 1990년에 Danish National Research Centre에 있는 핵연료에 대한 XRF 장비가 해체된 이후 현재 이 실험을 수행할 능력을 보유한 시설은 세계 어디에도 없다[3]. 감마선 분광기술은 EPMA에 비해서 시편제도가 간단하고 표면효과가 작은 장점을 갖고는 있지만, 감마선을 방출하는 방사능 핵종만 검출할 수 있다.

이 연구는 감마선 분광기술을 이용하여 반경방향 핵종 분포를 측정하고 핵분열기체 방출과의 관련성을 분석하기에 앞서, Ru-106 핵종을 이용하여 반경방향 연소도 분포를 측정하는 방법에 관한 연구이다.

2. Cesium 핵종

Cesium은 핵연료 연소과정에서 발생하는 중요한 핵분열 생성물 중의 하나이다. Cs^+ 이온은 U^{4+} 이온에 비해 거의 두 배정도 크기 때문에 UO_2 내의 Cs의 solubility는 매우 낮고, 출력 과도상태에서 grain 밖으로 쉽게 방출된다. 또한 1200°C 이상에서는 Xe과 거의 같은 방출거동을 보여준다. Cs-137의 경우 반감기가 30.7년으로 조사시편에서 다른 핵종에 비해 상대적으로 높은 gamma intensity를 보여주며, power history와 핵연료의 농축도에 무관하게 연소도에 선형적인 생성 패턴을 보여주는 것으로 알려져 있다[4].

연소된 핵연료의 Cs의 일반적인 반경방향 분포 특성은 핵연료의 grain growth 영역에서 Cs 방출이 발생하여 펠렛 중앙부에서 농도가 감소하는 형태를 보여준다. 41GWd/tU

연소도 핵연료의 경우, 800°C 이하의 정상상태 운전을 통해서도 Cs 방출이 보고되고 있다[5]. 핵연료의 축방향 연소도 분포의 경우 Cs-137이 연소도에 대한 정보를 제공해주지만 반경방향 분포는 Cs migration으로 연소도의 상대적인 분포를 얻기 어려운 것으로 보인다. 감마스캐닝에 의한 연소도 분포를 구하기 위해 비휘발성 핵분열 생성물인 Ru-106을 고려해 보았다.

Cs-134 핵종은 반감기 5.243일인 Xe-133이 베타붕괴하여 Cs-133으로 핵변환된 후 중성자 포획을 통해 생성된 것으로, 핵분열 기체의 반경방향 이동 및 방출과 관련된 핵종이다[5]. Cs-134와 Cs-137 핵종의 반경방향 분포의 차이는 핵분열기체의 방출과의 관련성을 보여줄 것으로 기대된다.

3. 실험방법

상용로 핵연료봉에 대한 축방향 및 반경방향 핵종분포를 감마 스펙트럼 분석을 통해 측정하였다. 감마선 검출을 위해서 0.5mm×0.5mm의 슬릿이 사용되었고 HPGe 검출기가 사용되었다. 감마선 방출 핵종인 Cs-137, Cs-134, Ru-106, Ce-144, Eu-154를 축방향에 대해서 측정하였고 Cs-137에 대한 반경방향 분포를 측정하였다.

4. 결과

4.1. Origen-S 코드 계산

Ru-106이 연소도에 대해서 선형적인 형태를 보여주는지 평가하기 위해서 고리2호기 3주기 설계값을 사용하여 핵종생성량을 Origen-S[6]로 예측하였다. 그림 1은 Q17-D11 핵연료봉의 연소도별 Ru-106의 생성량을 보여준다. Ru-106 생성량은 연소도에 선형적으로 비례하지 않으며, Ru-106에 의해서 연소도의 상대적인 분포를 평가했을 경우, 보정이 필요함을 보여준다.

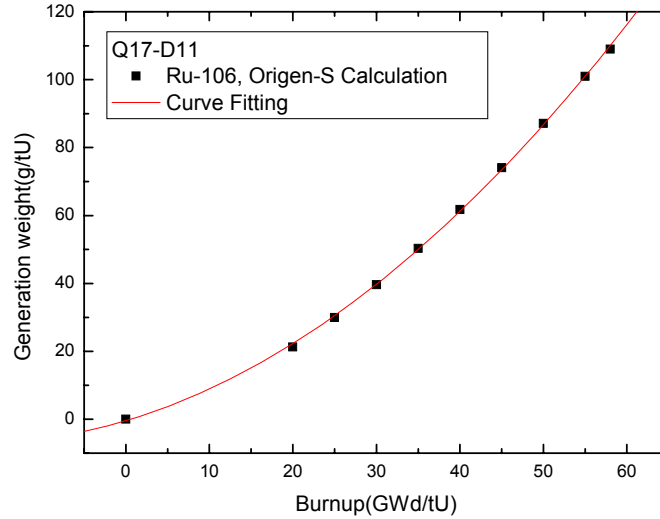


그림 1. Q17-D11 연료봉의 연소도별 Ru-106 생성량(Origen-S code 계산값)

4.2. 축방향 감마스캐닝

Ru-106이 상대적인 연소도 분포 평가에 적합한지 평가하기 위해, Cs-137과 Ru-106의 감마스캐닝 결과의 유사성을 검토하였다. 그림 2는 Q17-D11 핵연료의 8개 지점에서 축방향으로 측정된 감마스캐닝 결과를 평균검출량을 기준으로 상대적인 값으로 변환하여 비교한 그림이다. 표 1은 각 핵종의 Cs-137의 상대적인 검출량과의 편차를 보여준다. Ru-106 핵종이 평균 편차가 매우 적은 것을 보여주지만, 상대적으로 낮은 연소도로 예상되는 축방향 3457mm 위치의 경우 8%의 큰 편차를 보여준다. 이는 Ru-106 핵종이 연소도에 선형적인 관계를 갖고 있지 않기 때문으로 연소도에 따른 오차의 불균형을 보여주는 것이다.

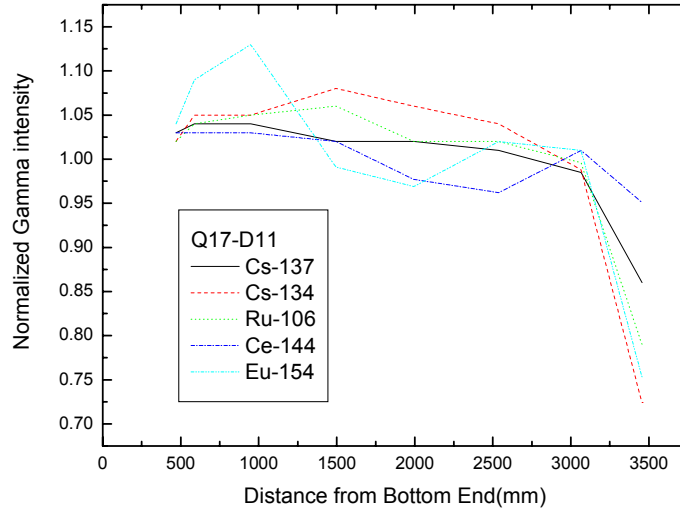


그림 2. Q17-D11 연료봉의 축방향 핵종 분포

표1. 각 핵종의 Cs-137 상대적인 검출량과의 편차(Q17-D11)

축방향 위치(mm)	Cs-137 검출량과의 상대적인 편차(%)			
	Cs-134	Ru-106	Ce-144	Eu-154
469	1.0252	0.5512	0.1521	0.7027
587	0.2071	0.1537	1.6586	4.2778
948	1.7499	1.2772	0.9362	8.8130
1495	5.0868	3.4919	0.0050	3.2098
1994	3.7717	0.2920	3.8950	4.6811
2537	3.2591	1.3135	4.3495	1.7409
3065	0.2657	1.1644	2.0875	2.6745
3457	15.7626	8.0639	10.6182	12.3876
평균	3.8910	2.0385	2.9628	4.8109

각 핵종의 검출량을 평균값을 이용하여 상대적인 수치로 변환하는 것은 Cs-137 이외의 핵종들이 연소도에 선형적으로 비례하지 않으므로, 각 핵종의 상대적인 검출량이 1에 해당하는 값을 같은 연소도 위치라고 추정하기는 어렵다. 상대적인 값에 대한 기준값으로 평균을 대체할 통계적인 파라미터는 중앙값(median)이다.

Ru-106 핵종이 상대적인 연소도 분포를 보여주기 위해서는 Cs-137 핵종 검출량의 중앙값과 Ru-106의 중앙값을 같은 연소도로 가정하고, Ru-106으로 평가된 중앙값 이상, 이

하의 값에 대해서는 Origen-S의 연소도별 분포(그림 3)를 이용하여 보정하면 된다. 다시 말해서 이차함수의 형태를 보여주는 Ru-106의 카운트별 연소도 분포를 중앙값을 지나가는 가상의 선형적인 함수로 바꾸어주는 것이다.

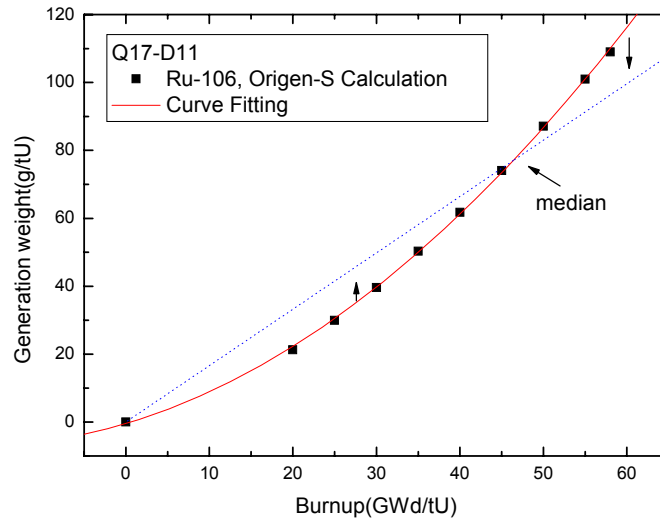


그림 3. Q17-D11 연료봉의 연소도별 Ru-106 생성량의 보정

Cs-137에 의한 측방향 연소도 분포와 봉평균 연소도값을 이용하여 계산한 결과 측방향 8개 지점에서 측정한 Cs-137의 중앙값에 해당하는 연소도는 47GWd/MTU이었다. 그림 4는 위의 방법을 통해 계산된 상대적인 검출량에 대한 보정값을 보여준다. 보정식은 이차 지수함수로 표현되는데 식은 다음과 같다.

$$Calibration\ Factor = 0.6556 + 1.0407 \exp\left(\frac{-Count_{rel.}}{0.9072}\right) + 0.8366 \exp\left(\frac{-Count_{rel.}}{0.1179}\right) \quad (1)$$

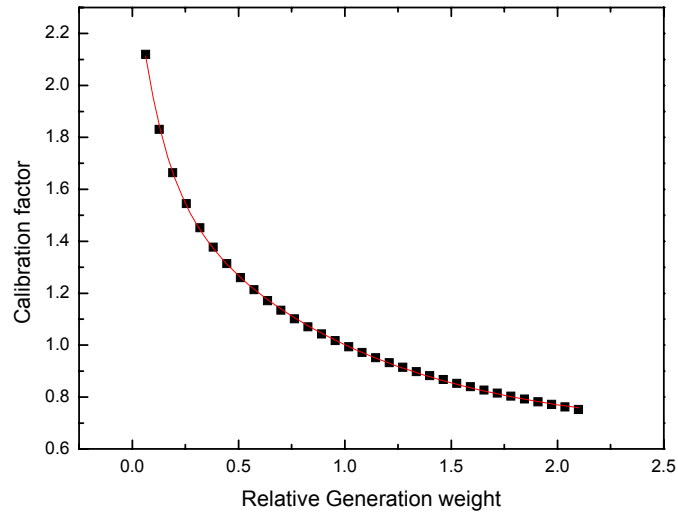


그림 4. Ru-106의 상대적인 검출량의 보정곡선(Q17-D11)

보정값을 적용하여 Cs-137과 Ru-106 핵종의 분포를 다시 나타내면 그림 5와 같다. Ru-106의 Cs-137에 대한 상대적인 편차는 3.28%로 평균을 기준값으로 했을 경우에 비해 오히려 증가하였으나 축방향 3457mm 위치의 저연소도 영역에서의 오차는 2.98%로 크게 감소하였다. 보정으로 인하여 연소도별 오차의 불균형은 해소되었지만 Ru-106의 전체적인 분포의 이동이 요구된다. 이에 대한 오차를 줄이기 위해서는 더 많은 축방향 데이터 수의 확보가 필요하다고 여겨진다.

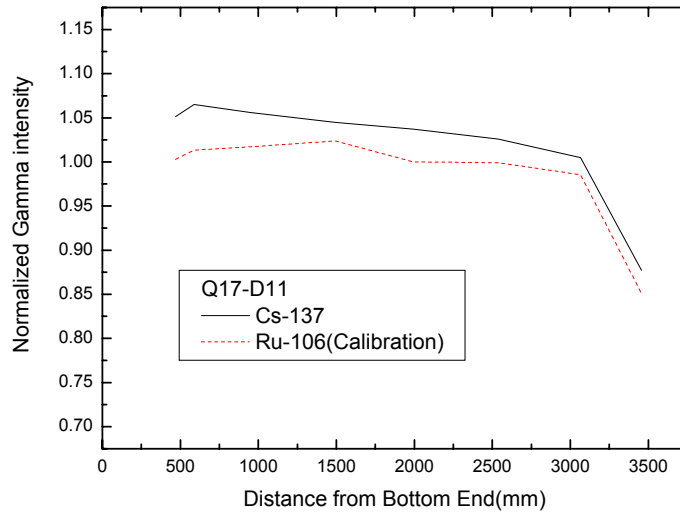


그림 5. Cs-137과 보정된 Ru-106의 핵종 분포 비교(Q17-D11)

4.3. 반경방향 감마스캐닝

Q17-A03 핵연료봉에 대하여 반경방향 Cs-137 감마스캐닝을 수행하였다. 6G 시편은 3022mm, 7G 시편은 3392mm 축방향 위치에서 선택되었고, 예상되는 평균연소도는 각각 43.39 GWd/MTU, 36.97 GWd/MTU이다. Cs-137 분포와 연소도 분포를 비교하기 위해서 반경방향 연소도 분포 예측 프로그램인 RAPID[7]를 사용하였다. 이 프로그램은 펠렛 외곽의 Pu-239의 축적과 그로 인한 연소도 증가를 잘 예측하는 것으로 알려져 있다.

그림 6과 7은 Cs-137 반경방향 핵종 분포와 연소도 분포를 비교한 그림이다. 연소도의 경우 평균 연소도가 높은 6G 시편이 펠렛의 표면부분에서 상대적인 연소도가 더 높은 것을 볼 수 있으나 Cs-137 핵종 분포는 거의 유사한 형태를 보여준다. 펠렛의 RIM 영역에서의 연소도 급증은 RAPID 프로그램에 의하면 0.1mm 내외에서 발생한다. 하지만 감마스캐닝 장치는 슬릿사이즈가 0.5mm로 RIM영역의 미세부분에 대한 연소도 평가에는 부적합한 것으로 보인다. 다만 RIM 영역이 펠렛 평균연소도에 어느 정도 기여하는지는 평가할 수 있을 것이다.

Cs-137의 반경방향 분포를 보면 펠렛 외곽으로 Cs-137의 이동이 발생했음을 알 수 있다. 따라서 Cs-137로는 반경방향 연소도 분포를 추정하기 어려우며 이 연구에서 제안하였듯이 감마스캐닝에 의한 비휘발성 핵종인 Ru-106 검출에 의하여 상대적인 연소도 분포 추정이 가능할 것으로 여겨진다.

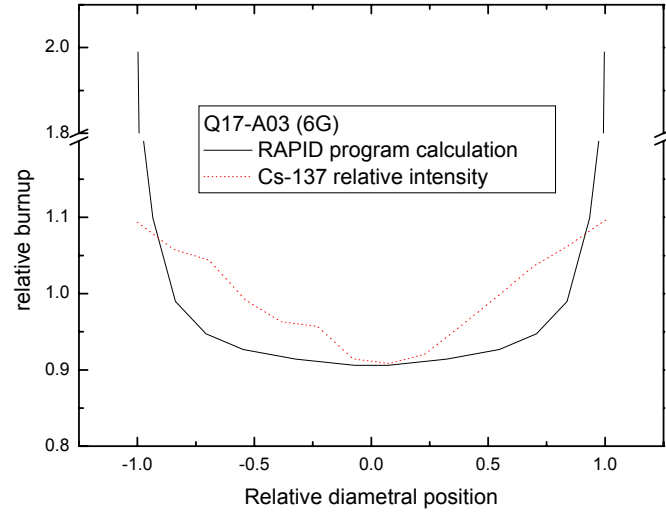


그림 6. 핵연료 반경방향 Cs-137 감마선 검출량과 연소도 분포(RAPID) 비교 (Q17-A03, 6G)

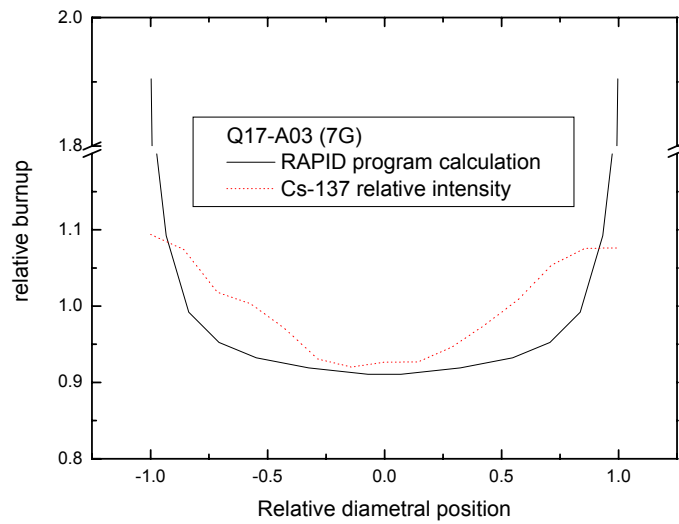


그림 7. 핵연료 반경방향 Cs-137 감마선 검출량과 연소도 분포(RAPID) 비교 (Q17-A03, 7G)

5. 향후 연구계획

현재까지는 한국원자력연구소 조사후시험시설을 이용한 Cs-137 이외의 핵종에 대한 반경방향 분포 측정 경험은 없다. 앞으로 Ru-106 뿐만 아니라 기타 감마선 방출 핵종에 대한 핵연료 반경방향 분포에 대한 데이터를 축적하고 이를 기반으로 핵연료의 건전성과의 관련성을 평가해 나갈 예정이다. 이 논문의 목적인 Ru-106에 의한 반경방향 연소도 분포예측의 유효성에 대한 검토는 이런 데이터를 바탕으로 이루어질 것이며, 또한 Cs-137과 Cs-134 핵종의 반경방향 분포 차이를 평가하여 핵분열 기체 방출거동과 어떤 관련을 갖고 있는지 검토해 나갈 예정이다.

6. 결론

Cs-137 핵종은 연소중 펠렛 외곽으로 이동하게 된다. 따라서 연료봉의 축방향의 경우 연소도 분포의 지표가 되는 Cs-137은 반경방향 분포를 나타내기는 어렵다. Ru-106은 비활성 핵분열 생성물로 감마선 검출량이 비교적 많고 다른 감마선 스펙트럼과 겹치는 부분이 적어 Cs-137을 대체하기 적당하지만 연소도에 선형적인 함수를 보여주지는 않는다.

이러한 Ru-106 핵종의 특성을 보정해 주기 위해 중앙값을 기준으로 한 상대적인 검출량과 Origen-S 코드로 계산한 핵종 생성량값을 이용하였다. 연료봉 축방향 감마스캐닝 데이터값을 보정한 결과 Ru-106에 의한 연소도분포 추정에 있어서 Cs-137과의 연소도별 오차의 불균형은 해소되었지만 전체적인 분포가 Cs-137 분포에 비교하여 낮은 값을 보여주었다. 이런 오차는 더 많은 데이터 수의 확보를 통해서 수정될 수 있을 것으로 여겨진다.

참고문헌

- [1] J.H. Pearce, et al., "Studies of The Radial Distribution of Pu, Xe and Cs in Irradiated Thermal-Reactor UO₂ Fuel, Using an Electron Probe Microanalyser", Journal of Nuclear Materials 116 (1983) 1-9
- [2] M.E. Cunningham, et al., "Development and Characteristics of The Rim Region in High Burnup UO₂ Fuel Pellets", Journal of Nuclear Materials 188 (1992) 19-27
- [3] M. Mogensen, et al., "Behaviour of Fission Gas in The Region of High Burn-up UO₂ Fuel Pellets with Particular Reference to Results from an XRF Investigation", Journal of Nuclear Materials 264 (1999) 99-112
- [4] C.T. Walker, et al., "Observations on The Release of Cesium from UO₂ Fuel", Journal of Nuclear Materials 240 (1996) 32-42
- [5] R. Manzel, et al., "The Radial Distribution of Fission Gases and Other Fission Products in Irradiated PWR Fuel", Journal of Nuclear Materials 126 (1984) 132-143
- [6] O.W. Hermann, et al., ORIGEN-S: Scale System Module to Calculate Fuel Depletion, Actinide Transmutation, Fission Product Buildup and Decay, and Associated Radiation Source Terms, ORNL/NUREG/CSD-2/V2/R6, 1998
- [7] 이찬복 외, RAPID Program to Predict Radial Power and Burnup Distribution in UO₂ Fuel, KAERI/TR-1217/99, 1999