2002 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

화학분석기반 사용후핵연료 연소도 비파괴 측정시스템 신뢰도 평가

Reliability Evaluation of NDT Burnup Measuring System Based on Chemical Analysis of Spent Nuclear Fuels

박광준,조일제,김정석,석호천
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

감마선분광분석 방법과 컴퓨터 코드계산 방법을 혼합한 비파괴적 방법을 이용하여 고리1호기 사용후핵연료 J14에 대한 연소도를 결정하고, 이 방법의 정확성을 확인하기 위하여 파괴적인 화학분석 방법으로 결정한 연소도 값과 비교평가하였다. 평가결과 화학분석 연소도 값을 기준으로 하였을 때, 비파괴 방법으로 결정한 연소도 값은 4.8 %의 오차 범위내에서 일치하는 것으로 나타났다.

Abstract

Burnup of spent nuclear fuel assembly J14 discharged from Kori-1 Nuclear Power Plant was determined by using Nondestructive Gamma-ray spectrometry combined with computer code calculation, and was compared and evaluated with the chemically determined burnup values in order to verify the precision of NDT method. As a result, nondestructively determined burnup values appeared to be agreed within 4.8 % error bound when the destructive chemical burnup value is referenced.

I. 서 론

사용후핵연료에 대한 정확한 연소도 평가는 저장, 수송, 재활용, 처분 등의 관리공정에서 안정성과 경제성을 판단할 수 있는 주요한 척도중의 하나이다[1-3]. 사용후핵연료에 대한 연소도 평가 방법은 비파괴적인 방법과 파괴적인 방법으로 구분되는데, 비파괴적인

방법으로는 주로 감마선분광분석법이 사용되고, 파괴적인 방법은 화학분석 방법을 이용하고 있다. 비파괴적인 방법으로 얻을 수 있는 결과는 상대측정에 의한 결과이기 때문에 절대측정 방법인 파괴분석 결과를 기준으로 하여 그 정확성을 검증 받아야 한다. 이러한 연소도 평가에 있어서 정확도는 평가과정에서 발생할 수 있는 오차를 분석함으로써 결정된다. 연소도 평가과정에서의 주요 오차는 사용후핵연료로부터 방출되는 감마선을 측정하여 얻은 스펙트럼의 피이크 분석, 상대검출효율곡선의 회귀분석, 연소도 모니터 핵종비 계산 등에서 발생한다. 이러한 오차는 단순히 감마선측정 시스템 및 실험자료분석 상의 오차이며, 최종 연소도 결정까지의 오차에는 전산코드 계산에 의한 오차도 포함된다. 그러나 본 연구에서는 화학분석결과와 직접 비교평가를 하기 때문에 전산코드에 의한 오차는 무시하였다. 사용후핵연료로부터 방출되는 감마선을 측정하여 획득한 스펙트럼 중에서 냉각시간을 고려하여 선택한 연소도 모니터 핵종인 Cs-137 및 Eu-154에 해당하는 피이크 분석 오차, 감마선 에너지의 함수로서 검출효율곡선 회귀분석 오차, Eu-154/Cs-137 핵종비 계산 오차 등 감마선측정에 관련된 오차를 분석하였다. 그리고 측정에 의한 핵종비와 코드계산에 의한 연소도-핵종비 관계로부터 연소도를 결정하였으며, 이러한 방법으로 구한 연소도는 화학적으로 구한 연소도와 비교평가되었다.

II. 실험 및 분석방법

사용후핵연료집합체 또는 연료봉에 대한 연소도 평가시험은 그림1과 같은 감마선측정, 컴퓨터 코드계산, 화학분석 등의 절차를 밟아 수행하였다.

1. 감마선 측정시험

(1) 측정장치

사용후핵연료로부터 방출되는 감마선 검출은 그림1과 같이 납셀(lead cell)내에 설치된 시준기, 고순도 Ge 검출기와 핫셀 밖에 설치된 고전압공급장치(High Voltage Supplier), 다중채널분석기(Multi-Channel Analyser: MCA)/개인용 컴퓨터(Personal Computer) 등으로 구성된 전자장비를 사용하여 수행하였다.

(2) 시편준비

시험대상 사용후핵연료로는 표1에서와 같은 중성자조사이력을 갖는 고리1호기 J14 집합체가 선택되었다. 이 핵연료집합체의 상부노즐((top nozzle)이 한국원자력연구소의 조사후시험시설(Post Irradiation Examination Facility: PIEF) 해체수조(dismantling pool)에서 절단되었으며, 여러 개의 연료봉 중에서 시험대상 연료봉으로서 E11 연료봉이 인출되었다. 그런 다음 그로스감마스캐닝(gross gamma scanning) 시험이 이 연료봉의 전체

길이에 대하여 축방향 연소도분포를 얻기 위하여 비파괴시험 핫셀에서 수행되었으며, 그 결과로부터 시편으로 사용할 위치를 선정하게 되었다. 그 위치는 연료봉 하단으로부터 346 mm, 660 mm 및 862 mm 지점이며, 시편준비핫셀내에서 다이아몬드 절단기를 사용하여 약 1 mm 두께로 절단되었다. 이들 시편은 화학분석 핫셀로 옮겨진 후 화학약품에 의해 용해되어 그 중 일부 용액을 유리 및 플라스틱 바이알에 넣은 후, 다시 HPGe 검출시스템이 있는 조사후시험시설 납셀까지 공기이송시스템(pneumatic transfer system)을 이용하여 이송되었다.

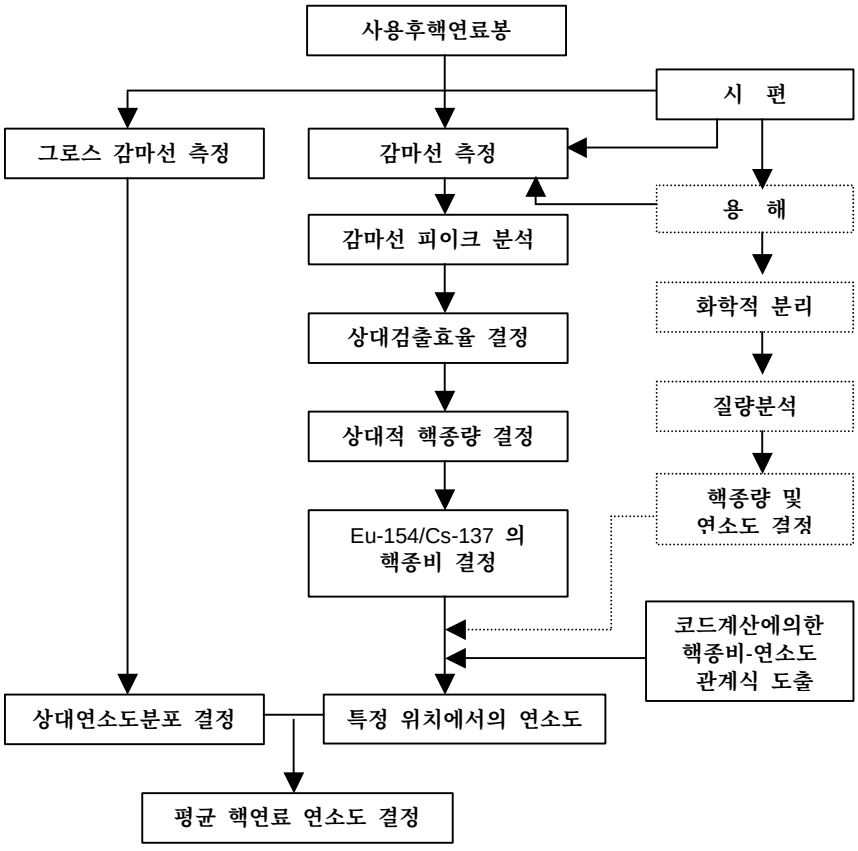

그림1. 사용후핵연료의 연소도 결정 및 평가 절차.

표1. 사용후핵연료집합체 J14의 특성 및 중성자조사 이력

Fuel Type	Enrichment	Irradiation Reactor	Cycle (Position)	Discharge Burnup	Discharge
14x14 PWR	3.1968 wt%	Kori-1	7(E9), 8(J5), 9(H11)	37,840 MWd/tU	20 Jan.1989

(3) 시편측정

감마선 검출 시험은 그림1과 같은 검출시스템에서 수행되었다. 감마선 검출시 1차 및 2차 시준기는 시편 전체에서 방출하는 감마선을 수집하기 위해서 모두 제거하고, 그에 따른 감마선 계수율 조절 및 입체각 효과를 크게 하기 위해서 위 아래로 넓게 열린 대칭형 삼각뿔 형태의 시준기와 시편홀더를 별도로 제작하여 사용하였다. 이는 화학분석 방법에서 시편 전체를 용해시켜 얻는 연소도와 대등한 비교를 하기 위한 것이다. 감마선 검출 시간은 반감기가 짧은 연소도 모니터(burnup monitor) 핵종을 검출하기 위하여 7,200초로 하였다.

2. 오차분석

(1) 감마선 측정 오차

측정상의 오차를 줄이기 위하여 3개의 시편 J14-E11-4번, 7번, 9번에 대하여 각각 7 9회 반복 측정하여 평균값과 표준편차를 계산하였다.

(2) 상대검출 효율 오차

J14 핵연료의 냉각시간이 측정시점기준 약 11년 9개월이 경과되었기 때문에 연소도 모니터 핵종으로 사용할 수 있는 Eu-154 피이크들을 사용하여 각 피이크에 해당하는 에너지에서의 분지비를 고려하여 상대검출효율을 결정하였다.

(3) 핵종비 결정 오차

연소도 모니터 핵종으로 선택한 Cs-137 와 Eu-154 의 원자수 밀도 비 계산에서의 오차는 각 피이크 면적 결정시의 오차와 검출효율의 오차를 종합적으로 고려하여 결정하였다.

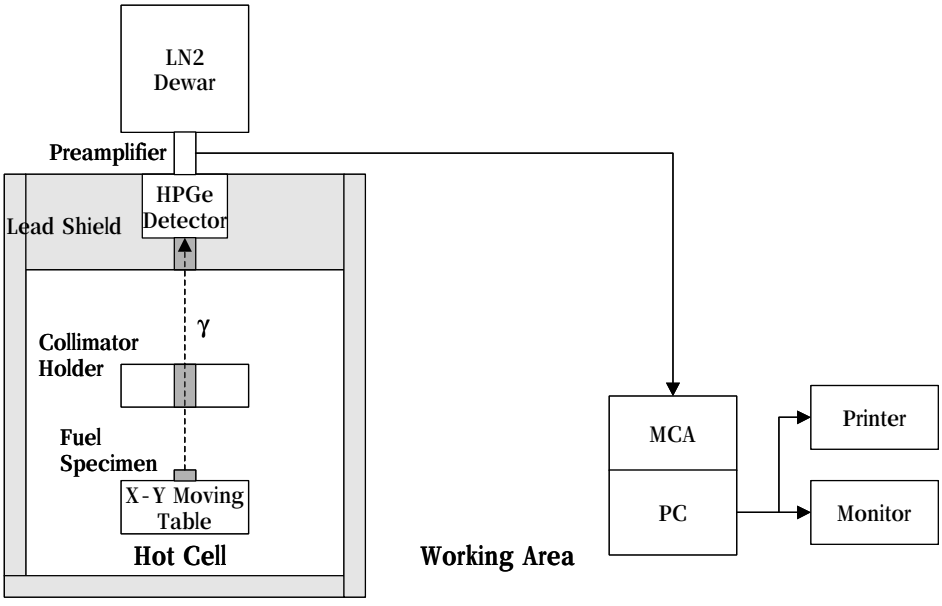

그림2. 사용후핵연료 시편에 대한 감마선 검출시스템의 개요도.

3. 컴퓨터 코드계산에 의한 연소도-핵종비 관계식 도출

사용후핵연료에 대하여 감마선 분광분석법으로는 직접 연소도를 결정할 수 없기 때문에, 컴퓨터 계산에 의해서 연소도-핵종비 관계식을 도출하여 감마선분광분석법으로 구한 핵종비를 상관시켜 연소도를 간접적으로 결정하였다. 연소도 변화에 따른 모니터 핵종량은 SCALE4.4의 ORIGEN-S 코드[4]를 이용하여 계산하였는데, 이때 연소도는 10-50 GWd/tU 범위까지 2 GWd/tU 간격으로 입력하여 계산하였다.

4. 화학분석

핵연료시료 용액중의 U, Pu 및 Nd를 순수하게 분리하기 위하여 2단계 음이온교환수지 분리관을 이용하였으며, 분리된 동위원소 조성은 열이온화 질량분석기(thermal ionization mass spectrometer)를 이용하였다. 그리고 연소도 결정에 필요한 시료용액중의 U, Pu 및 Nd-148 정량은 스파이크(spike)로서 U-233, Pu-242 및 Nd-150을 첨가하여 동위원소희석 질량분석법(isotope dilution mass spectrometry)을 이용하여 결정하였다. 시료의 용해, 전처리, 화학적 분리, 질량분석 및 연소도 계산 과정은 ASTM[5]을 근거로 확립한 방법[6,7]에 준하여 수행하였다.

III. 결과 및 고찰

J14-E11-4번, 7번, 9번 용액시편의 연소도는 감마선 분광분석으로 얻은 모니터 핵종의 비와 SCALE4.4의 ORIGEN-S 코드계산에 의해 얻은 모니터 핵종의 비를 상관시켜 결정하였다. 즉, 코드계산에 의해서 연소도-모니터 핵종비와의 관계식을 구하고, 그런 다음 감마선 분광분석에서 얻은 모니터 핵종비 값을 그 관계식에 대입하여 연소도를 결정하였다.

1. 오차분석

(1) 감마선 측정 오차

측정상의 오차를 줄이기 위하여 J14-E11-4번, 7번, 9번 시편에 대하여 각각 7 9회 측정하였다. 감마선 피이크 분석상의 오차는 다중채널분석 카드내 피이크 분석 소프트웨어에서 (1)식과 같은 식을 사용하여 계산하기 때문에 별도의 오차분석은 생략하였다. 측정회수 n을 7-9회로 한 이유는 표준편차 결정식(1)에서 n이 커지면 편차가

줄어들기 때문이다.

$$s = S = \pm\sqrt{\left\{\sum (x_i - x)^2 / (n-1)\right\}} \qquad (1)$$

그리고 측정값들 사이의 차이는 대부분의 경우 근소하지만 일부 측정값에서 평균값으로부터 많이 벗어나는 경우도 있다. 이러한 측정자료는 배제하고 표준편차를 계산하였다.

(2) 상대검출효율 오차

연소도 모니터 핵종인 Eu-154에서 방출하는 여러 개의 감마선 피이크 중에서 감마선 강도가 비교적 높은 723.3 keV, 873.2 keV, 1004.8 keV의 에너지를 갖는 4개 피이크를 분석하고, 또한 그에 상응하는 감마선 분지비 19.7, 11.45, 17.9, 35.5를 고려하여 해당 에너지에서의 상대검출효율을 결정하였다. 낮은 에너지 영역에서부터 높은 에너지 영역까지의 검출효율을 결정하기 위해서 이러한 4개의 자료점을 점철하여 (2)식과 같은 회귀직선을 얻었으며, 그 직선은 그림3과 같다. 이 회귀직선에 대한 오차는 식(3)과 같은 잔차제곱합을 이용하여 오차항의 분산 σ^2을 결정함으로서 계산하였다[8].

$$y = a + bx \qquad (2)$$

$$a = 1.52482 \pm 0.02256,$$

$$b = 4.10747 \pm 2.27887$$

$$s^2 = \frac{SSE}{n-2}, \qquad SSE = \sum_{i=1}^{n} e_i^2 = \sum_{i=1}^{n} (y_i - \hat{y}_i)^2 \qquad (3)$$

여기서 e_i는 잔차(residual), SSE는 잔차제곱합(residual sum of squares), n는 자료점의 수, y_i 와 $\hat{y}_i$ 는 각각 독립변수인 감마선 에너지 E_i에 대응하는 관측값 및 회귀직선을 이용하여 구한 추정값을 나타낸다.

또한 기본자료로부터 추정된 회귀선이 그 자료에 어느 정도 접합한가를 측정하는 척도인 결정계수(coefficient of determination)는 다음식을 근거로 하여 계산하였다.

$$r^2 = \frac{SSR}{SST} = \frac{\sum_{i=1}^{n} (\hat{y}_i - \bar{y})^2}{\sum_{i=1}^{n} (y_i - \bar{y})^2} \qquad (4)$$

여기서 SSR 회귀제곱합(regression sum of squares), SST는 총제곱합(total sum of squares)을 나타낸다. r^2값이 1에 가까울수록 데이터가 회귀선 부근에 집중되는 것이므로

회귀직선식이 의미가 있으며, 계산결과는 표2와 같다.

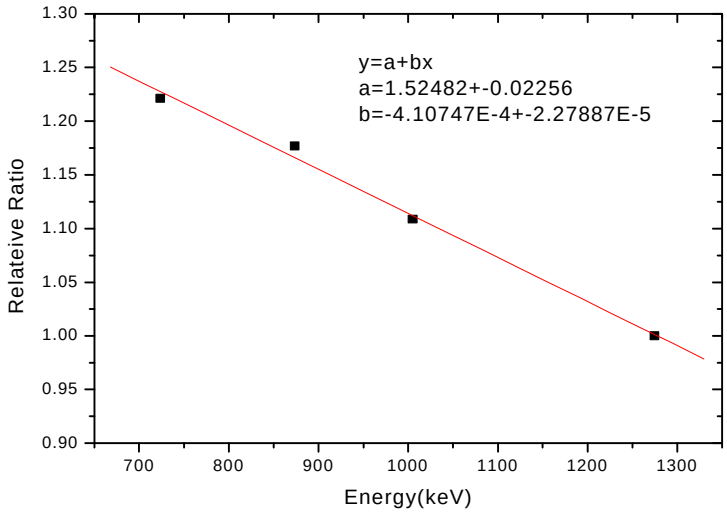

그림3. Eu-154의 감마선 에너지를 이용하여 결정한 검출효율 회귀직선.

표2. 회귀분석오차 분석과정에서 결정한 주요 인자의 계산값

	Sum of Squares	Square Mean	Coefficient of Determination(r^2)
Regression	SSR = 0.035106	MSR = 0.035106	
Residual	SSE = 0.000626	MSE = 0.000313	0.98248
Total	SST = 0.035732		

(3) 핵종비 결정 오차

J14-E11-4번, 7번, 9번 시편에 대한 감마선 측정 통계오차와 에너지의 함수로서 상대검출효율 회귀직선 결정 오차를 고려하여 연소도 모니터 핵종 Cs-137과 Eu-154 의 상대적인 원자수 밀도를 구하였다. 이 두 핵종의 원자수밀도 비 Eu-154/Cs-137에 대한 오차는 나눗셈 형태의 오차의 전파 관계식(5)를 이용하여 계산하였다.

$$s = \frac{X_1}{X_2}\sqrt{\left(\frac{s_1^2}{x_1^2}+\frac{s_2^2}{x_2^2}\right)} \qquad (5)$$

표3은 동일시편에 대해 7회 측정하여 결정한 각각의 핵종비와 오차를 나타낸다. 표3에서 보는 바와 같이 2번째 및 7번째 측정분에 대한 핵종비 오차가 5 % 이상 벗어난 것을

제외하고 나머지는 1.4 % 내외의 오차범위 이내에서 일치하는 것으로 나타났다. 이러한 결과는 감마선 측정에 의해 1.4 % 이내의 정확도로 연소도 모니터 핵종비를 결정할 수 있다는 것을 의미한다.

표3. J14-E11-4번 시편의 7회 측정에 의한 핵종비 및 오차

Measurements	Eu154/Cs137 Ratio	Error	Burnup (GWd/tU)
1	7.82E-3	3.2E-4	34.9
2	7.89E-3	6.2E-4	35.6
3	7.70E-3	2.9E-4	34.2
4	7.71E-3	3.5E-4	36.3
5	7.98E-3	3.9E-4	34.2
6	7.65E-3	3.9E-4	34.2
7	7.70E-3	4.9E-4	34.9
Mean	7.80E-3		34.9
Standard Error		1.12E-4	

2. 컴퓨터 코드계산에 의한 연소도-핵종비 관계식 도출

SCALE4.4의 ORIGEN-S 코드계산에 의한 연소도-핵종비 관계식은 연소도 변화에 따라 계산한 핵종비의 자료를 곡선 점철(curve fitting)하여 결정하였다. 그 결과 연소도-핵종비 관계식은 (6)식과 같이 점철되었으며, 그림4와 같은 곡선형태를 갖는다.

$$Isotope\ \mathrm{R}atio = A + B_1(Burnup) + B_2(Burnup)^2 \qquad (6)$$

$$A = -9.69004 \times 10^{-4}$$

$$B_1 = 3.54089 \times 10^{-4}$$

$$B_2 = -2.94845 \times 10^{-6}$$

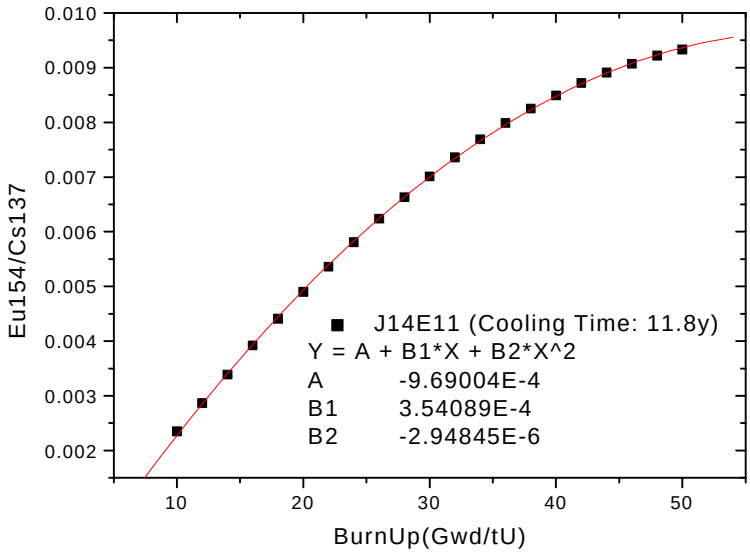

그림4. 코드계산에 의한 연소도 값과 Eu-154/Cs-137 비의 관계곡선.

3. 화학적 연소도 기준 측정 시스템의 정밀도 검증

(1) 핵연료봉 특정 위치에서의 연소도 결정

J14-E11 핵연료봉의 3개 위치, 즉 연료봉 하단으로부터 346 mm, 660 mm, 862 mm 지점에서 잘라낸 4번, 7번 및 9번 시편에 대하여 비파괴적인 감마선분광분석 및 코드계산 방법을 혼합하여 연소도를 결정하였으며, 또한 각각의 시편에 대하여 파괴적인 화학분석 방법으로도 연소도를 결정하였다. 두 가지 방법으로 결정한 특정 위치에서의 연소도는 표4와 같다. 이 표에서 보는 바와 같이 각 시편에 대하여 비파괴 방법으로 결정한 연소도 값과 화학분석 방법으로 결정한 연소도 값의 차이는 화학분석 연소도 값을 기준으로 하였을 때, 평균 ±4.8 %가 나는 것을 알 수 있다. 이 값은 바로 비파괴적으로 결정하는 연소도의 정확도가 되는 것이다.

표4. 비파괴 및 파괴적인 방법으로 결정한 핵연료봉 특정 위치에서의 연소도

Sample	Axial Position	Isotope Ratio (Eu-154/Cs-137)	Burnup(GWd/tU)		Diff.
			NDT	Chem.	
J14-E11-4	346 mm	7.78×10^{-3} ± 1.4%	34.9	36.2	3.6 %
J14-E11-7	660 mm	8.28×10^{-3} ± 1.4%	38.4	36.2	6.0 %
J14-E11-9	862 mm	8.10×10^{-3} ± 1.4%	37.1	39.0	4.8 %

(2) 평균 연소도 결정

그림5는 J14-E11 핵연료봉의 축방향 그로스감마스캐닝 결과로부터 얻은 상대 연소도 분포이다. 이러한 분포로부터 대략적인 평균 계수율 위치는 12,000 cps 근방이 된다는 것을 알 수 있다. 그러나 정확한 계산을 하기 위하여 (7)식을 이용하였다. 그림5에서 보는 바와 같이 핵연료봉 양단 부근에서는 연소도가 낮게 나타났는데, 이러한 것은 원자로심내 위치에 따른 중성자 분포와 관련이 있기 때문이다. 다시 말해, 노심의 중앙부분보다 상부와 하부에서 중성자 밀도가 낮기 때문이다. 또한 화학분석 연소도를 결정한 위치에서의 계수율을 찾아내고, 그 값을 평균 계수율 위치에서의 계수율 값과 비교하여 연소도를 결정하였다. 표5는 J14-E11-4번, 7번, 9번 시편에 대해 NDT 및 DT 방법으로 결정한 연소도 값을 기준으로 하여 환산한 J14-E11 핵연료봉의 평균 연소도를 나타낸다.

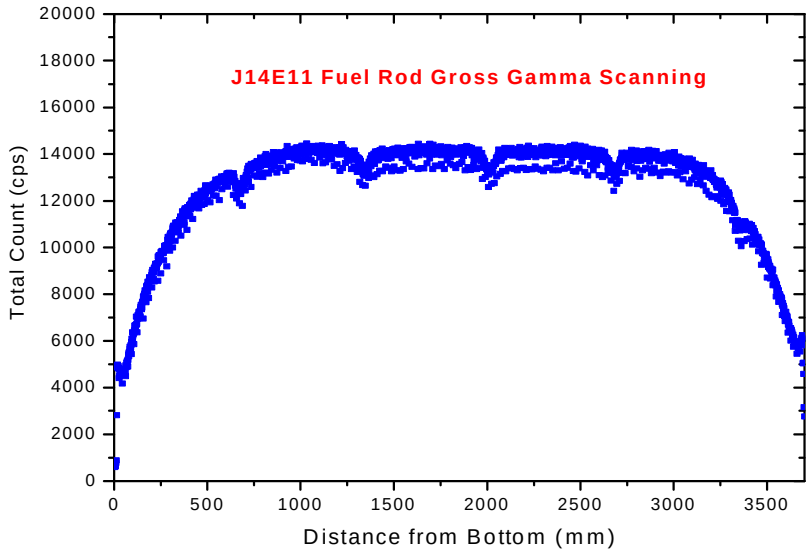

그림5. J14-E11 연료봉에 대한 축방향 상대 연소도 분포.

$$Average\ Count\ Rate = \sum_{i=1}^{n} C_i / n \qquad (7)$$

여기서 C_i 는 측정 위치별 계수율이고, n은 측정 위치의 수이다.

표5. J14-E11 핵연료봉의 상대 연소도 분포를 근거로 결정한 핵연료 평균 연소도

Average Burnup (GWd/tU)						
No.4 Sample Ref.		No.7 Sample Ref.		No.9 Sample Ref.		Declared
NDT	Chem.	NDT	Chem.	NDT	Chem.	37.8
39.5	41.0	38.4	36.3	33.4	35.0	

이상적인 경우, 핵연료봉의 어느 위치에서 절대 연소도를 결정하더라도 전체 핵연료봉의 평균 연소도는 같은 값이 되어야 하지만, 측정상의 오차가 발생하기 때문에 같은 값이 될 수 없다. 그러므로 ±5 % 이내의 작은 오차범위 내에서 일치하면 신뢰성이 있다고 할 수 있다. 그리고 발전소 공표값(declared burnup)은 집합체에 대한 평균 연소도 값이기 때문에 연료봉의 평균 연소도와는 약간의 차이가 있다. 그 차이는 수평방향 연소도구배(horizontal burnup gradient)에 의해서 발생되는데, J14집합체는 원자로에서 3주기에 걸쳐 연소하는 동안 노심 중앙으로부터 상하 좌우로 교체됨으로서 그 구배는 무시할 정도로 작게 나타난다. 그러므로 수평방향 연소도구배가 무시될 경우, 핵연료집합체 연소도와 연료봉의 연소도는 1 ton을 기준으로 환산되기 때문에 같게 된다.

Ⅳ. 결 론

감마선분광분석법과 컴퓨터 코드계산 방법을 혼합한 방법을 이용하여 사용후핵연료에 대한 연소도를 결정하고, 이 방법의 정확성을 확인하기 위하여 화학분석 방법으로 결정한 연소도 값과 비교평가하였다. 실험에 사용된 사용후핵연료는 고리1호기에서 방출된 J14 집합체이며, 이중 E11 연료봉으로부터 절단된 시편을 화학적으로 용해시켰다. 이러한 용액시편에 대하여 감마선 스펙트럼을 획득하고, 연소도 모니터 핵종인 Cs-137와 Eu-154의 피이크를 분석한 후 이들 핵종의 비를 결정하였다. 이러한 핵종비를 결정할 때 발생되는 주요 오차로는 감마선 측정 오차, 상대검출효율에 대한 회귀분석 오차, 연소도 모니터 핵종비 결정 오차 등을 고려하였다. 각각의 오차를 분석한 결과, 감마선 측정에 의한 Eu-154/Cs-137비 결정 오차는 ±1.4 %로 계산되었다. 그리고 코드계산에 의한 연소도-핵종비 관계와 측정에 의한 핵종비를 상관시켜 연소도를 결정하였으며, 이러한 비파괴적인 방법으로 결정한 연소도는 파괴적으로 화학분석한 연소도 값과 비교 평가되었다. 그 결과 ±4.8 % 이내의 정확도를 갖는 것으로 나타났다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었음.

참고문헌

1. U.S. DOE, DOE/RW-0472 Rev.1, (1997).
2. K.J. Park et al., KAERI/TS-98/99, (1999).
3. K.J. Park et al, KAERI/TS-52/98, (1998).
4. O.W. Hermann and R.M. Westfall, ORNL/CR-0200, Vol.2, Rev.5, (1995).
5. American Society for Testing and Materials Standard Method E321-96, 1(1996).
6. J.S. Kim et al., J. Korean Nucl. Soc., 21(4), 277 (1989).
7. J.S. Kim et al., J. Korean Nucl. Soc., 33(4), 375 (1989).
8. W. Lichten, Data and Error Analysis 2nd Ed., Prentice Hall, (1999).