

2000 추계학술발표회 논문집  
한국원자력학회

## 하나로 1차 냉각수내의 방사성 핵종 분석을 통한 핵연료 손상 감시 가능성 검토

### Investigation of Possibility for Fuel Failure Detection by Analysis of Radionuclide in Primary Coolant of HANARO

김명섭 · 박상준 · 황승렬 · 전병진

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요 약

하나로의 정상 운전 상태에서 1차 냉각수 중의 방사성 핵종을 분석하였으며, 이를 통하여 핵연료 손상을 감시할 수 있는 가능성을 검토하였다. 핵종 분석에는 HPGe 감마선 계측 계통을 이용하였으며, 30분, 2시간, 17시간 동안 측정된 감마선 스펙트럼을 이용하여 피크가 나타난 대부분의 핵종을 확인하였다. 또한 6개월 동안의 냉각수 핵종 분석 결과와 1차 배관 지발 중성자 측정 결과를 비교하였으며, 수조 냉각수 측정 결과가 지발 중성자 측정값의 변화 경향과 유사함을 확인하였다. 따라서 핵연료 손상을 감시할 수 있는 핵종과 감마선 피크를 결정할 수 있었으며, 선택된 핵종은 Xe-138(434 keV), I-134(846 keV), Cs-138(1435 keV)이다. 이로써 하나로 1차 냉각수를 분석하여 핵연료의 손상을 감시할 수 있는 가능성을 확인하였다.

#### Abstract

During the normal operation of HANARO, the radionuclide in the primary coolant are analysed, and the possibility for fuel failure detection by the analyses is investigated. The analysis of radionuclide is performed by using the HPGe gamma-ray detection system, and most nuclide which represent the peaks are confirmed by using the gamma-ray spectrums measured for 30 minutes, 2 and 17 hours. Also, the analyses for the radionuclide of coolant for 6 months are compared with the measurements of delayed neutron in the

primary cooling circuit, and the result of analyses is similar to the variation of the measurements of the delayed neutron. So the nuclide and gamma-ray peaks which can detect the fuel failure are determined, and the nuclide are Xe-138(434 keV), I-134(846 keV) and Cs-138(1435 keV). Therefore, the possibility for fuel failure detection by using the analysis of radionuclide in primary coolant is verified.

## 1. 서 론

하나로(HANARO)와 같은 연구용 원자로에서 핵연료의 손상 등으로 인한 비정상적인 방사능 유출을 감시하기 위해 주로 사용하는 방법은 1차 배관 냉각수의 방사선 준위 즉, 냉각수 내의 핵분열 생성물로부터 발생하는 감마선이나 지발 중성자를 감시하는 것이다 [1]. 하나로에서는 1차 배관내에서 핵분열 생성물로부터 방출되는 감마선의 준위를 감시하여 핵연료의 손상을 알아낼 수 있는 핵연료 손상 감시 계통(FFDS : Fuel Failure Detection System)을 1차 배관 외부에 설치하여 운영하고 있다. 이 방법은 핵연료의 손상을 빠른 시간내에 알 수 있지만 원자로 1차 배관의 주 방사선원인 N-16으로부터 발생하는 고에너지 감마선 때문에 핵분열 생성물에서 발생하는 감마선을 효과적으로 측정하는데 어려움이 있다. 이러한 감마선을 감시하는 FFDS 외에 1차 배관의 중성자를 계측하여 비정상적인 상태에서 방출되는 지발 중성자(Delayed neutron)를 감시하는 방법이 있으며, 하나로에서도 여러 분석 결과 그 타당성이 확인되어 운용을 계획하고 있다[2,3,4].

이와 같은 핵연료 손상 감시 계통 외에 하나로에서는 원자로 수조 냉각수를 채취하여 냉각수내에 포함되어 있는 각종 방사성 핵종을 분석함으로써 핵분열 생성물로부터 방출된 원소들의 준위를 확인하는 방법도 사용하여 왔다. 이 방법은 실시간 핵연료 손상 감시 계통에 비해 응답 시간이 매우 느리고 절차도 복잡하지만 기존 계통에서 사용할 수 없는 HPGe 감마선 계측 계통을 사용하여 가장 확실하게 핵분열 생성물로부터 방출된 원소들의 준위를 확인할 수 있다. 따라서 이 방법을 기존의 핵연료 손상 감시 계통과 함께 사용함으로써 핵연료 손상 감시 분석의 신뢰성을 크게 향상시킬 수 있다. 이 방법이 핵연료 손상 감시에 유용하게 사용되기 위해서는 원자로가 정상적으로 운전하고 있는 동안 냉각수내에 포함되어 있는 핵종을 파악하고 그 핵종들 중에서 주로 감시해야 할 핵종을 파악하는 것이 매우 중요하다. 이에 따라 본 논문에서는 하나로 수조 냉각수를 채취한 후 HPGe 감마선 계측 계통으로 분석하여 냉각수에 포함된 방사성 핵종을 정성적으로 분석하였으며, 이러한 방법으로 비정상 상태를 감시할 수 있는 가능성을 검토하고 그 절차를 확립하였다.

## 2. 실 험

본 연구에서 사용된 감마선 계측기는 상대 효율이 15 %인 HPGe 계측기이며, 계측기의 주요 제원은 표 1과 같고, 감마선 계측 계통은 그림 1과 같다. 원자로가 22 MW로 정

상 운전하고 있는 동안 냉각수를 채취한 후 감마선 계측 계통으로 30분간(live time) 측정하여 얻은 감마선 스펙트럼은 그림 2와 같다. 또한 30분 동안 측정한 스펙트럼에서 면적이 작은 피크들을 정확하게 분별하고, 반감기에 따른 피크 면적의 변화를 이용하여 각 핵종을 보다 정확하게 확인하기 위하여 2시간 및 17시간 동안의 측정도 수행하였다. 냉각수 채취량은 30분 측정의 경우에는 200 cc, 2시간 및 17시간 측정의 경우에는 300 cc였으며, 냉각수는 우회 배관의 1차 정화 계통 입구 전단에서 채취하였다.

냉각수를 채취한 후 감마선 측정이 시작될 때까지의 시간은 약 4분 정도이며, 따라서 수조 냉각수 방사선의 대부분을 차지하는 N-16 감마선(반감기 7.1초)은 대부분 붕괴하였으리라 생각된다. 이를 확인하기 위해서 계측 계통의 증폭기 증폭율을 최소로 하여 냉각수를 측정해 본 결과 N-16 감마선의 영향은 나타나지 않았다. 스펙트럼 분석은 간편하게 사용할 수 있는 GammaVision-32 프로그램을 이용하여 수행하였다.

표 1. HPGe 계측기의 주요 제원.

Model	GEM-15180-P EG&G ORTEC
FWHM at 1.33 MeV	1.80 keV
Relative Efficiency at 1.33 MeV	15 %
Peak-to-Compton Ratio(Co-60)	46
Crystal Diameter	55.0 mm
Crystal Length	37.2 mm
End Cap to Crystal	3 mm

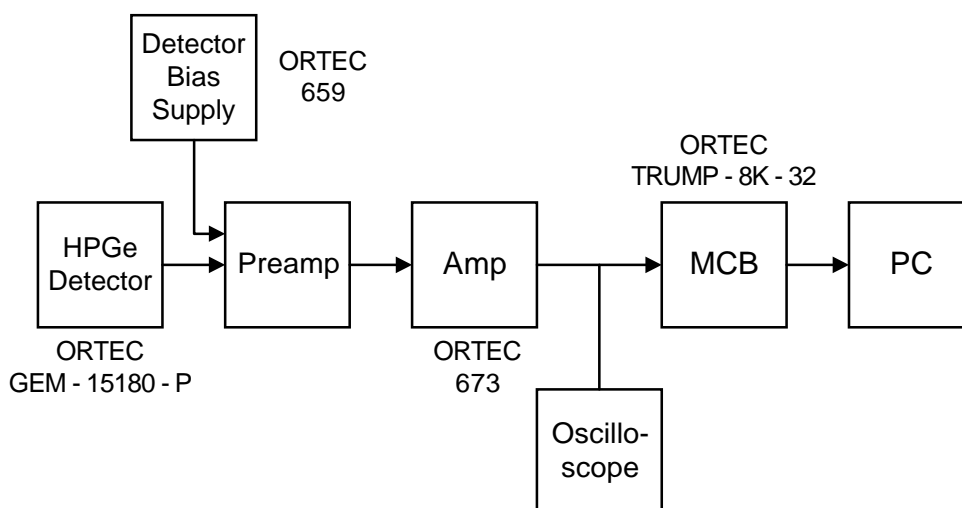


그림 1. 수조 냉각수 감마선 계측 계통.

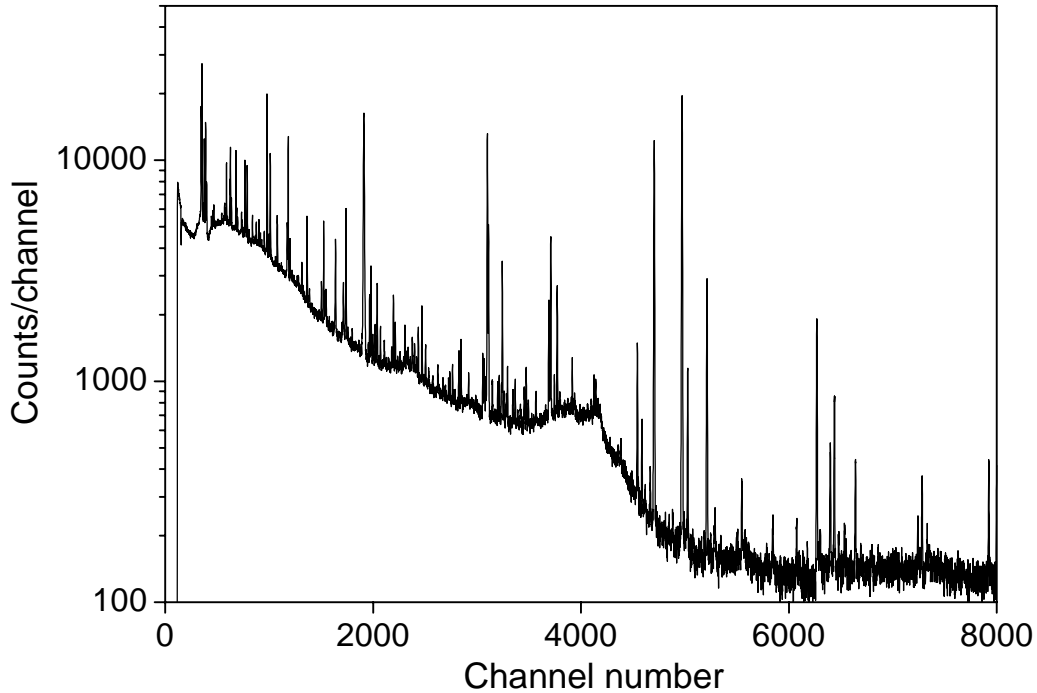


그림 2. HPGe 계측기를 이용하여 측정된 냉각수 감마선 스펙트럼.

또한, 장기간에 걸친 냉각수 핵종 분석 결과의 변화를 확인하기 위해 약 6개월간 매주 1회, 원자로 출력이 22 MW에 도달한 후 약 36 시간이 지난 뒤에 동일한 방법으로 냉각수를 200 cc씩 채취하여 30분 측정을 수행하였다.

### 3. 냉각수 핵종 분석 결과

원자로를 22 MW로 운전하는 동안 냉각수를 채취, 감마선을 측정하여 확인된 방사성 핵종은 표 2와 같다. 표 2에서 여러 에너지의 감마선을 방출하는 핵종은 갈래비가 10 % 이상인 감마선 에너지만 나타냈으며, 100 keV 이하 또는 2 MeV 이상의 에너지를 가진 감마선은 실제로 스펙트럼의 분석 대상이 아니지만 참고를 위해 표에 나타냈다. 각 감마선 피크와 핵종의 대응은 핵종의 붕괴 구조, 갈래비, 30분, 2시간 및 17시간 동안 측정된 스펙트럼에서 각 피크의 면적과 핵종의 붕괴 반감기 등을 고려하여 결정하였다[5,6,7]. 표 2에서 1461 keV 감마선 피크에 대응되는 K-40은 자연 background에 포함되지만 수조 냉각수에도 존재할 수 있으므로 표에 포함하였다.

표 2. 하나로 1차 냉각수 중의 방사성 핵종.

원자번호	핵 종	반감기	에너지 (keV)	갈래비 (%)	원자번호	핵 종	반감기	에너지 (keV)	갈래비 (%)
11	Na-24	14.959h	1369	100	47	Ag-110m	249.79d	657.76	94
			2754	99.944				884.68	72.2
12	Mg-27	9.458m	843.76	71.8	52	Te-133	12.5m	937.49	34.13
			1014.44	28				1384.3	24.12
13	Al-28	2.2414m	1778.85	100	53	I-131	8.021d	763.9	22.14
18	Ar-41	109.34m	1294	99.1				I-132	137.7m
19	K-40	1.277e9y	1461	10.67	54	Xe-133m	55.4m		
24	Cr-51	27.702d	4.95	13.1				53	I-132
			320.08	10.08	312.07	62.4			
25	Mn-56	2.578h	846.75	98.9	53	I-131	8.021d	407.63	27.1
			1810.72	27.2				667.72	98.7
36	Kr-85m	4.48h	2113.05	14.3	53	I-132	137.7m	1333.21	10.7
			304.87	14				772.6	75.6
	Kr-87	76.3m	402.59	50	53	I-133	20.8h	863.96	15.6
			2392.11	34.6				914.77	10.9
	Kr-88	2.84h	196.3	26	53	I-134	52.5m	914.77	10.9
			2195.84	13.2				522.65	16
	Rb-88	17.78m	834.83	13	53	I-132	137.7m	954.55	17.6
			1529.77	10.9				630.19	13.3
	Rb-89	15.15m	1836	21.4	53	I-133	20.8h	529.87	87
			898.03	14				847.03	95.4
	Rb-89	15.15m	1031.92	58	53	I-134	52.5m	884.09	64.9
			1248.14	43				1072.55	14.9
	Rb-89	15.15m	2195.92	13.3	53	I-135	6.57h	884.09	64.9
			657.77	10				1260.41	28.9
	Sr-91	9.63h	1024.3	33.4	54	Xe-133m	52.56h	1131.51	22.74
			749.8	23.6				29.78	29.8
	Sr-92	2.71h	1383.93	90	54	Xe-135	9.14h	249.79	90.1
			590.24	67				29.46	16.1
	Sr-93	7.423m	875.73	24.1	54	Xe-135m	15.29m	29.46	16.1
			888.13	21.8				33.6	10.6
	Sr-93	7.423m	710.31	21.8	54	Xe-137	3.818m	233.2	10
			168.5	18.2				258.41	31.5
	Y-91m	49.71m	555.57	94.9	54	Xe-138	14.08m	434.56	20.3
			934.47	13.9				1768.26	16.7
	Y-92	3.54h	934.47	13.9	54	Xe-135m	15.29m	2015.82	12.3
			756.73	54.46				1435.86	76.3
	Zr-95	64.02d	724.2	44.17	55	Cs-138	33.41m	462.8	30.7
			743.36	93.06				1009.78	29.8
	Zr-97	16.9h	765.81	99.81	55	Cs-138	33.41m	2218	15.2
			657.94	98.23					
	Nb-95	34.975d	739.5	12.13	55	Cs-138	33.41m		
			140.51	89.06					
	Nb-97	72.1m	306.83	88	55	Cs-138	33.41m		
			497.08	91					
	Mo-99	65.94h			55	Cs-138	33.41m		
	Tc-99m	6.01h			55	Cs-138	33.41m		
	Tc-101	14.22m			55	Cs-138	33.41m		
	Ru-103	39.26d			55	Cs-138	33.41m		

표 2. 하나로 1차 냉각수 중의 방사성 핵종(계속).

원자번호	핵 종	반감기	에너지 (keV)	갈래비 (%)	원자번호	핵 종	반감기	에너지 (keV)	갈래비 (%)		
56	Ba-139	83.06m	547	10.76	74	Ce-143	33.039h	293.27	42.8		
			165.86	24				36.03	32.3		
	Ba-140	12.752d	537.26	24.39				35.55	17.7		
			4.65	15				40.7	12.2		
			29.97	14.1				57.36	11.7		
Ba-141	18.27m	190.33	46	93	W-187	23.72h	685.73	27.3			
		304.19	25.4				479.55	21.8			
		276.95	23.4				61.14	12.5			
		343.67	14.4				72	11.1			
		1596.21	95.4				14.3	63			
57	La-140	40.274h	487.02	45.5	93	Np-239	56.556h	106.12	27.2		
			815.77	23.28				103.76	22.5		
			328.76	20.3				277.6	14.38		
			La-142	91.1m				641.28	47.4	99.55	14
								2397.8	13.3	228.18	10.76
58	Ce-141	32.501d	2542.7	10				117	10.6		
			145.44	48.2							

연구용 원자로의 냉각수에 포함되어 있는 방사성 핵종의 발생 원인은 아래와 같이 분류할 수 있다. 이 가운데 처음 세 가지는 정상적인 상태에서 발생하는 것이고, 나머지 네 가지는 비정상 상태이다.

- 1) 냉각수 그 자체와 냉각수에 용해된 물질의 방사화
- 2) 노심 구조재에서 방사화된 물질의 냉각수로의 용해
- 3) 핵연료 표면에 오염된 우라늄의 핵분열
- 4) 동위원소 생산 등을 위해 조사중인 시료의 누설
- 5) 핵연료 손상
- 6) 방사성 시료 취급 중 누설로 인한 오염
- 7) 냉각수 수질 저하로 인한 불순물의 방사화와 구조물 부식 촉진으로 인한 용해량 증가

이러한 핵종 생성 원인 중 냉각수 또는 냉각수에 용해된 물질의 방사화에 의해 생성되는 가장 대표적인 핵종은 N-16과 Ar-41이다. 이중 N-16은 1차 냉각수 감마선의 대부분을 차지하지만 반감기가 약 7초로서 짧기 때문에 냉각수를 채취하여 측정할 때까지 대부분 붕괴하여 측정되지 않는다. Ar-41의 경우에는 물속에 녹아있는 Ar-40의 방사화로 생긴다.

지금까지의 수조 냉각수 화학 분석에서 Na가 간혹 발견된 적은 있으나 이는 측정시의 오염으로 판단되며, 측정 한계(0.01ppm) 이상의 Mn도 발견된 적이 없다. 따라서 냉각수에서 검출되는 Na-24는 A1의 (n, α) 반응, Mn-56은 Fe의 (n,p) 반응에 의해 생성되는 것으로 판단된다. 이 반응들은 고속 중성자에 의한 반응이며 하나로 노심에서 알루미늄은

핵연료의 피복재, 철은 유동관 입구 부위 구조물의 구성 성분이다. 또한 Al-28은 알루미늄의 방사화에 의해 생성된다.

W-187은 텅스텐의 방사화로 생기는데, 노심 구조물 가운데 텅스텐이 사용된 곳은 없으며, 냉각수 화학 분석에서도 발견되지 않았다. 그런데, W-187이 측정되는 것은 텅스텐이 금속을 용접할 때 전극으로 사용하는 물질이기 때문에 용접 부위에는 약간의 텅스텐 오염이 있으며, 이것이 방사화되어 생기는 것으로 추정된다. 텅스텐의 방사화 단면적은 열중성자에 대해 33.6 mb으로 큰 편이므로 냉각수에 미량이 섞여 있어도 핵종 생성이 가능하다.

Cr-51은 크롬의 방사화로 생기는데, 크롬은 스테인레스 스틸에 들어 있다. 유동관과 핵연료 다발 중심봉의 재질인 질코늄의 방사화 핵종으로는 Zr-95가 주로 생기는데 이 핵종은 핵분열 생성물이기도 하다. 구조물의 방사화로 생기는 핵종 가운데 발견되고 있는 것들은 물에 대한 용해도가 높거나 고속 중성자의 반응으로 생기는 것들이다.

나머지 검출 핵종들은 대부분 핵분열 생성물인데 원자료가 정상적으로 운전하고 있었음에도 핵분열 생성물이 검출되는 것은 핵연료의 표면에 오염된 우라늄의 핵분열 때문이라고 생각된다[8,9].

#### 4. 핵분열 생성물로부터 방출된 감마선 피크 면적의 변화 경향

수조 냉각수에 존재하는 핵분열 생성물로부터 방출되는 감마선 피크를 분석하여 그 중계측 통계성이 우수한 세 피크의 면적 변화 경향을 살펴보면 그림 3과 같다. 각 감마선 피크의 면적은 규격화를 위해 각 측정 스펙트럼에서 가장 전형적인 피크이며, 핵분열 생성물과 무관한 Na-24의 1368 keV 피크 면적으로 나누었다. 그림에서 비교 대상이 된 1차 배관 지발 중성자 측정값은 하나로의 핵연료 손상 감시 계통으로 사용할 목적으로 운용중인 BF<sub>3</sub> 지발 중성자 계측 계통의 측정값이다. 그림에 나타난 세 피크들은 각 에너지 영역에 골고루 분포되어 있으며, 200 cc를 채취하여 30분 정도 측정하면, Xe-138 434 keV 피크는 14000, I-134 846 keV 피크는 25000, Cs-138 1435 keV 피크는 20000정도의 면적을 얻을 수 있다. 또한 반감기가 14.08분으로 가장 짧은 Xe-138의 경우 냉각수 채취 후 측정이 시작될 때까지의 시간 차이가 1분인 경우 이론적인 면적의 차이는 5 % 이내이다. 따라서 냉각수를 채취하여 측정이 시작될 때까지의 시간(약 4분)의 차이로 인한 면적 변화는 무시할 만하다.

그림에서 알 수 있는 바와 같이 관심의 대상이 된 세 감마선 피크의 면적 변화 경향은 지발 중성자 측정값의 변화 경향과 유사하다. 지발 중성자 측정값은 측정이 수행된 6개월 동안 약 30 % 정도 지속적으로 증가하였는데 핵종 분석의 결과로 얻은 세 감마선 피크 면적도 6개월 동안 약 30 % 정도 상승했다. 또한 2월 중순, 4월 말, 5월 말 경에 지발 중성자 측정값이 갑자기 상승하였는데 세 피크의 면적 또한 갑자기 상승하였다. 원자료에 특별한 이상이 없는데도 불구하고 지발 중성자 측정값이나 핵분열 생성물의 감마선 피크 면적

이 증가하는 것은 핵연료의 표면에 오염된 우라늄의 핵분열 때문이라고 생각된다. 참고로 그림 3에서 화살표로 표시한 부분은 노심에 새 핵연료가 장전된 시점이다. 따라서 위와 같이 핵분열 생성물로 나타난 핵종으로부터 방출된 세 감마선 피크의 분석을 통해 노심을 감시할 수 있는 가능성을 확인할 수 있었다.

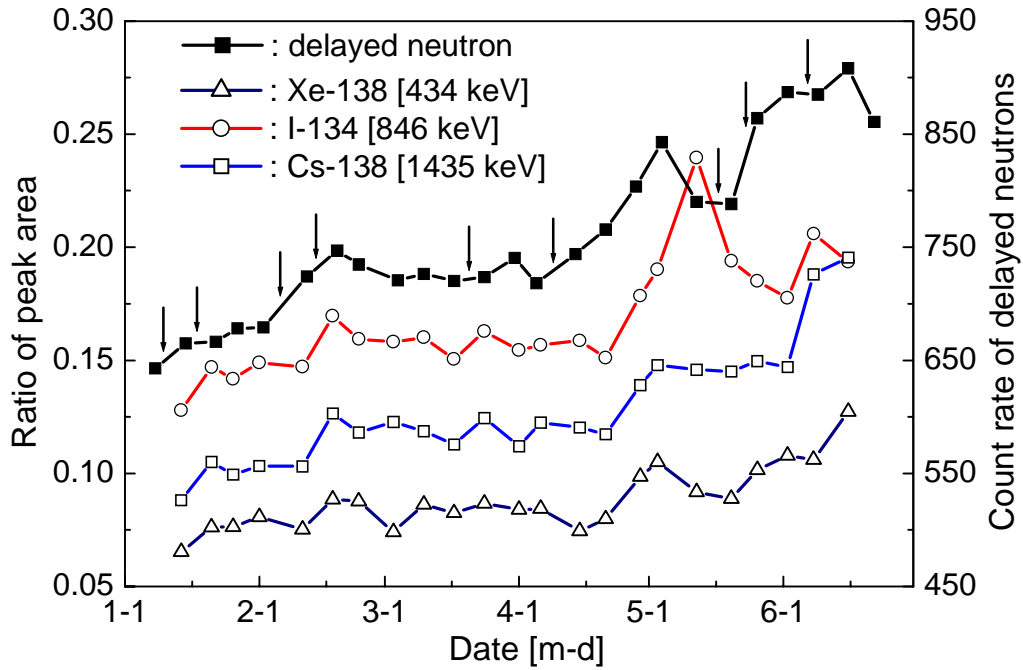


그림 3. 냉각수 핵종 분석 결과 및 지발 중성자 측정값의 변화 경향.

지금까지의 냉각수 핵종 분석은 감마선 피크로부터 핵종을 확인하는 정성적인 분석에 그쳤으나 향후에는 감마선 분석 계통의 부피 선원에 대한 효율 검증 등을 통해 냉각수에 포함된 각 핵종의 정량 분석을 수행하고, 핵종 발생 원인에 따른 발생량 계산 작업도 병행하여 보다 정밀한 분석을 수행할 계획이다.

## 5. 결 론

하나로의 정상 운전 상태에서 1차 냉각수에 포함되어 있는 방사성 핵종을 분석하였으며, 이를 통하여 핵연료 손상 등과 같은 비정상 상태를 감지할 수 있는 가능성을 조사하였다. HPGe 감마선 계측 계통으로 1차 냉각수를 분석한 결과 감마선 피크가 나타난 대부분의 핵종을 분별하였으며, 그 발생 원인을 분석하였다. 또한 핵분열 생성물로 나타난 핵종으로부터 방출된 감마선 피크의 분석을 통해 노심을 감시할 수 있는 적절한 핵종과 감마선 피



크를 선정하였다. 이로써 냉각수의 핵종 분석 방법이 핵연료 손상 등의 비정상 상태를 감시하는데 유용한 방법임을 확인하였다.

## 참 고 문 헌

1. S. K. Ayazuddin, T. Hayat, A. A. Qureshi and H. A. Khan, "Fuel-Failure Detection System for Pakistan Research Reactor-1" Ann. Nucl. Energy, Vol. 24, No. 15, p.1213, 1997.
2. 김명섭, 홍광표, 전병진, "하나로 1차 배관의 중성자 발생원 분석", '98춘계학술발표회논문집, 한국원자력학회, 1998. 5.
3. 김명섭, 전병진, "몬테카를로 방법을 이용한 하나로 1차 배관에서의 중성자 발생량 계산", '98추계학술발표회논문집, 한국원자력학회, 1998. 10.
4. 김명섭, 전병진, 김영기, 박상준, 이병철, "하나로 1차 배관에서의 중성자 측정을 이용한 핵연료 파손 감시 가능성 검토", 기술보고서, KAERI/TR-1608/2000, 2000. 6.
5. G.F. Knoll, "Radiation Detection and Measurement", John Wiley & Sons, 1989.
6. 村上悠紀雄, 團野皓文, 小林昌敏 編, "放射線データブック", 地人書館, 1982.
7. NuclideNavigator V3.0, EG&G ORTEC, 1999.
8. 전병진, "연료봉 표면의 우라늄 오염 측정", HAN-RO-CR-97-020, 1997. 5.
9. 박상준, "KFC-020 표면 오염 검사 결과", HAN-RO-CR-97-040, 1997. 9.