

화학분석 방법에 의한
핵종량 예측 코드 (ORIGEN-S) 평가연구

Experimental Verification of the Depletion Code (ORIGEN-S)
by Chemical Assay Methode

김종훈, 박광준, 조일제, 김정석, 박성원

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

고리 1호기에서 배출된 사용후핵연료를 대상으로 정량분석법 연소도값과 SCALE 4.4 (ORIGEN-S)코드값을 비교, 분석을 하였다. 평가방법은 연소도측정에 이용되는 4개의 지표핵종 Cs-134, Cs-137, Ru-106 및 Eu-154 중 Eu-154/Cs-137에 대한 핵종비와 냉각시간 및 연소도의 상관관계를 이용하였으며, 코드에 의한 평균 연소도값은 화학분석값과 비교하여 C-15 그리고 A-39 핵연료봉의 경우 약 1 % 이내의 아주 좋은 결과를 얻을수 있었으나, J-14 핵연료봉의 경우에는 약 8 %의 오차 범위에서 일치함을 알 수가 있었다.

Abstract

Burnup of the fuel rod taken from spent fuel assemblies C15, G23 and J14 discharged from Kori-1 was examined by destructive chemical assay and determined by Nd-148 mass spectrometry methode. And then they were compared with the caculated burnup of ORIGEN-S for the code verification by using activity ratio Eu-154/ Cs-137. As a result of the comparison, burnup of Nd-148 chemical methode has a good agreement with the caculated burnup within 1 % error in C-15 and G23 rod, and within 8 % in the J-14 rod.

1. 서 론

사용후핵연료의 연소도는 사용후핵연료를 효율적으로 관리하는 측면에서 중요하지만 더욱이 안전성측면에서도 중요한 특성인자이기에 이에 대한 연구가 계속하여 활발히 추진되어왔다.

따라서 연소도측정의 결과는 핵연료제조에 중요한 핵공학적 기본정보를 제공 할 뿐 아니라 사용후핵연료의 저장 및 수송 그리고 처리에 활용되는 기본자료로써 이용되고 있다.

사용후핵연료의 측정엔 특성을 지닌 몇가지 지표핵종 (Burnup monitor)을 이용하여 파괴 또는 비파괴적 방법으로 측정을 하고 있다. 이러한 측정방법에 대한 연소도를 예측 할 수 있는 코드의 계산값을 이용하여 연소도를 예측함으로써 사용후핵연료의 관리에 사용되고 있다. 이와같은 여러가지의 핵종량 계산코드중에 미국 ORNL에서 개발한 SCALE 4.4를 이용하여 지표핵종의 핵종량을 분석함으로써 연소도를 예측하여 왔다.

사용후핵연료의 연소도를 예측하는 방법으로는 사용후핵연료의 핵적특성에 대한 핵종별 량을 계산 할 수 있는 ORIGEN-S 코드의 계산값을 이용하고 있으며, 대표적인 방법으로는 감마선 및 중성자 측정 방법등을 이용하여 감마선을 방출하는 지표핵종(Ru-106, Cs-134, Cs-137, Eu-154)의 측정량을 이용하여 코드 계산값과 비교. 분석함으로써 연소도를 결정하게 된다. 4개의 대표적인 연소도 지표핵종중 Cs-137은 U-235와 Pu-239로 부터의 핵분열수율(Fission yield)이 거의 같고 반감기가 30년이나되는 장수명핵종이며, 중성자흡수단면적(Neutron capture cross section)이 작기 때문에 지표핵종으로 많이 이용되고 있다. 그러나 고온에서 핵연료내에서의 이동(migration)에 영향이 크게 작용한다는 문제점을 안고있기도 하다.

단일 지표 핵종을 이용한 연소도의 예측값에 이용할 경우, 사용후핵연료의 연소도 기하학적 배열에 따른 검출효율을 결정하기가 어렵기 때문에 지표핵종의 방사능비율을 이용함으로써 절대연소도를 측정하는 방법으로 정확도를 향상시키고 있다. 이에, 단일지표핵종들을 서로 조합하여 핵종비를 나타내는 방법으로는 주로 Cs-134/Cs-137, Eu-154/Cs-137, 그리고 Ru-106/Cs-137 을 이용한다. Ru-106/Cs-137은 Ru-106의 짧은 반감기로 5년 이상의 저장기간을 지난 대부분의 사용후핵연료에서의 연소도결정에 만족한 결과를 얻을 수 없다. 반면에 2차핵분열핵종의 감마선강도 비인 비교적 반감기가 긴 Cs-137 나 Eu-154의 비율을 이용하므로써 이러한 문제점을 해결할 수가 있으며 현재 Eu-154와 의 Cs-137 비율을 많이 이용하고 있는 실정이다. 특히 10년정도의 냉각시간을 지난 사용후핵연료는 Eu-154/Cs-137의 핵종비를 이용하여 연소도를 예측하여 정확도를 향상시키고 있다.

2. 방 법

사용후핵연료의 연소도를 측정하는 방법에는 파괴적 측정방법인 화학분석방법과 비파괴적 측정 방법인 감마선/중성자선 측정방법을 들 수 있다. 실제측정에 대한 핵종 예측코드로는 ORIGEN-S 를 이용하여 핵종량을 계산하지만 각종 핵연료의 특성에 따라 검증이 필요하다.

이에, 핵종량 예측코드의 값에 대한 보정인자를 결정하기위하여 가압경수로형 사용후핵연료봉의 시료를 취하여 화학분석법인 Nd-148 정량법으로 연소도를 구한후 연소도와 Eu-154/Cs-137의 핵종비간의 관계식을 ORIGEN-S 코드값과 비교하였다. 표 1은 이 측정결과를 얻기위해 사용한 사용후핵연료의 특성을 나타내고 있다.

표 1. 가압경수로 사용후핵연료의 이력

핵연료봉 형태	핵연료봉	초기 농축도 (wt%)	핵연료 주기	배출일자	평균연소도 (GWd/tU)
가압경수로형 고리 1호기 (14x14)	C15-01 C15-02 C15-03	3.2	1주기(K3) 2주기(F8) 3주기(H3)	82년 12월	32
	A39-01	2.1	1주기(K7) 2주기(G7)	81년 1월	25.30
	J14-01	3.2	7주기(E9) 8주기(J5) 9주기(H11)	89년 1월	37.84

1) Nd-148 정량법에 의한 연소도 측정법

파괴시험(Destructive Analysis)으로 특정핵분열생성물의 농도를 직접 정량화 하는 화학적 방법으로 연소도지표원소인 Nd-148을 이용하여 정량화하는 방법이다.

Neodymium은 질량수 140-150까지의 천연동위원소를 갖는 원소로 이 가운데 지표원소로 쓰이는 Nd-148은 핵연료중의 분열성원소(U-235, Pu-239)들에 대해 같은 핵분열수율(Fission yield)을 가지며, 조사중 중성자포획에 의해 다른 원소로 변환이 적고 특히 질량분석에 필요한 방출특성(Emission characteristics)이 대단히 좋아 정확히 정량화 할 수 있다는 지표핵종으로의 이상적인 성질을 가지고 있어 연소도 측정방법으로 많이 이용되고 있다.

Nd-148의 정량은 반듯이 질량분석법으로써 측정해야 되는 것이다.

지표원소의 정량에 의한 연소도계산은 엄격한 의미에서 아래의 식을 사용한다.

$$Atom \% fission = \frac{(N_{fp}/Y) \times 100}{(N_U + N_{PU} + N_{NP} + N_{AM} + N_{CM} + N_{fp})/Y}$$

여기에서

Y = fission yield of monitor element

Nx = number of atoms of element

실제로 Np, Am, Cm의 양은 U와 Pu에 비해 무시해도 좋을 만치 적은 양으로, 연소도 계산결과에 거의 영향을 미치지 않는다고 생각할 때 일반적으로 ASTM E32-1-75에 의거한 다음과 같은 보다 간편한 식을 사용하기도 한다.

$$MWd/MtU = (9600 \pm 300) \times \frac{Y \times 100}{N_{U+PU} + Y}$$

Y = Nd-148 fission yield (1.69 %)

N_{U+PU} = number of atoms of (U+Pu)

2) ORIGEN-S 코드계산

SCALE 4.4 의 ORIGEN-S 전산코드를 이용하여 3종류의 가압경수로형 사용후핵연료의 지표핵종의 생성량을 계산하여 지표핵종의 방사능비를 비교.분석 하였다.

우선 5종류의 특성별 핵연료봉에 대한 연소도에 따른 Eu-154/Cs-137의 핵종비를 구한후 해당 핵연료 집합체의 정확한 입력자료에 대한 Eu-154/Cs-137의 핵종비를 비교하여 평균연소도를 찾아내는 방법으로 비교하였다. 그림 1은 해당 핵연료봉의 계산값중 C-15핵연료봉의 ORIGEN-S코드값에서 얻은 지표핵종의 생성비로써 연소도에 대한 Cs-137 핵종량의 변화를 나타내고 있다. Cs-137 핵종생성량의 연소도에 대한 변화율은 선형적으로 증가하는 것을 볼 수 있으며 연소도에 관계없이 일정량의 변화율로 나타낼수 있다.

그림 2는 Eu-154 핵종 생성량의 연소도에 대한 변화율로써 10-30 GWd/MtU에서는 급격히 변화하나 30 GWd/MtU이상에서는 선형적으로 증가하는 것을 알수가 있다.

그림 3은 서로 다른 냉각시간에 따른 연소도에 대한 Eu-154/Cs-137의 생성되는 핵종비를 볼 수 있다. Eu-154/Cs-137의 핵종비의 반감기를 계산하면 12,4년으로 냉각시간이 긴 사용후핵연료의 특성을 알아내는데도 사용될수 있다. 그림 3에서와 같이 Eu-154/Cs-137의 핵종비의 생성율은 사용후핵연료의 냉각시간에 따라 많은 변화를 보이고 있으며 이러한 현저한 생성율을 이용하여 연소도를 찾아낼수가 있다.

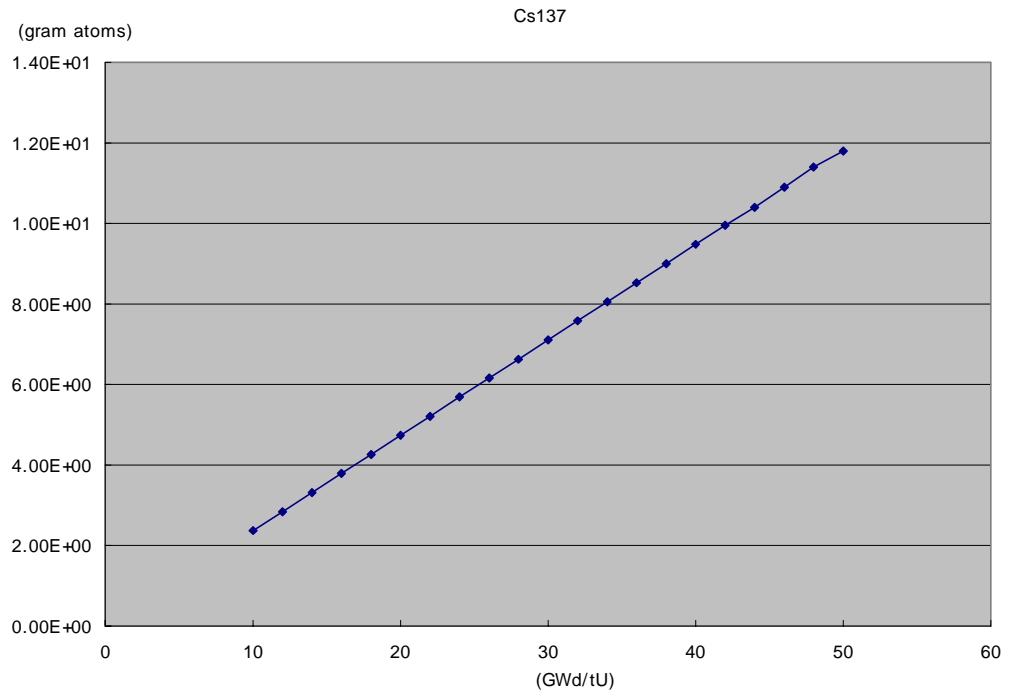


그림 1. C15 핵연료봉의 Cs-137의 연소도에 대한 코드 계산값 (냉각기간 : 5.5 년)

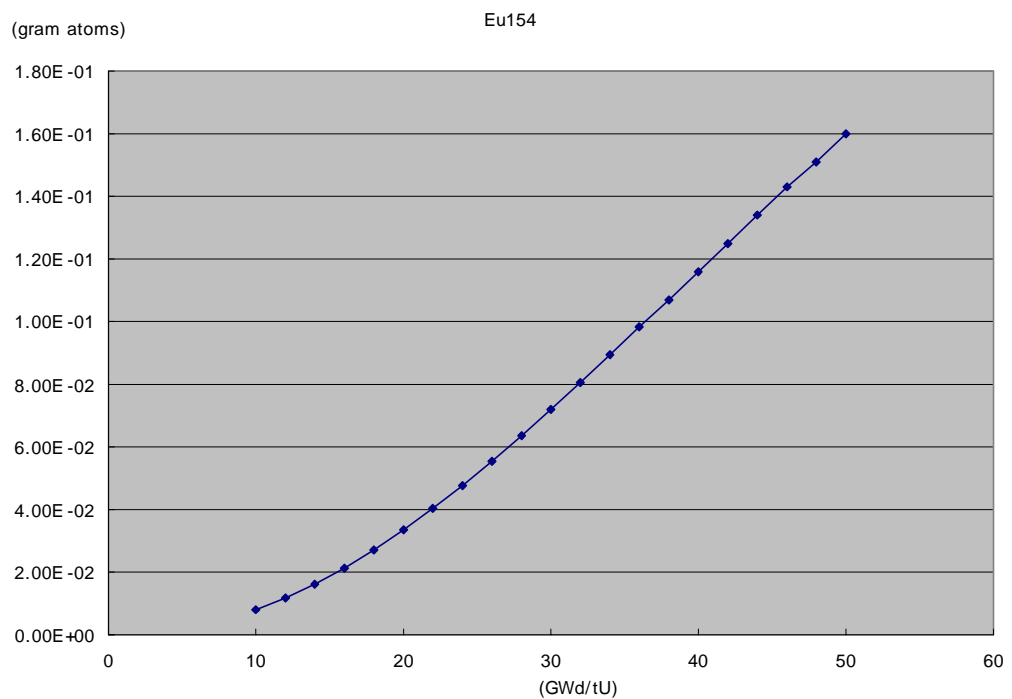


그림 2. C15 핵연료봉의 Eu-154의 연소도에 대한 코드 계산값 (냉각기간: 5.5 년)

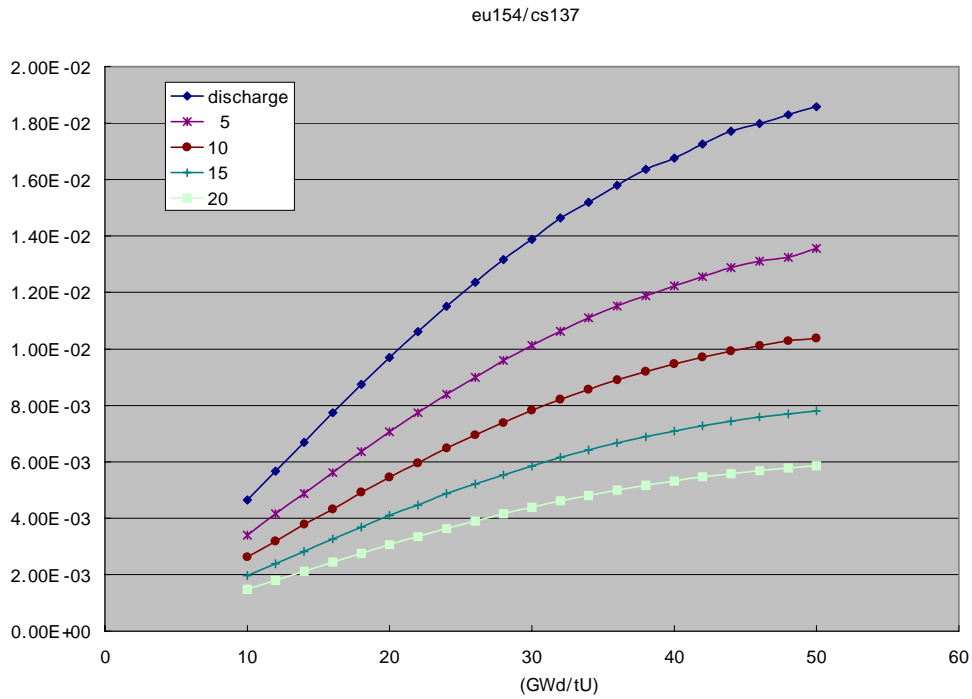


그림 3. C15 핵연료봉의 냉각시간별 연소도에 대한 Eu-154/Cs-137의 생성량 변화

3. 결과 및 고찰

연료봉에 대한 Nd-148정량분석법은 연소도를 구할 수 있었고 지표핵종의 방사능비는 SCALE 4.4의 ORIGEN-S 코드계산에 의해서 얻을 수가 있었다. 이 결과에 대한 비교는 표 2에 나타나 있으며, C-15와 A-39 핵연료봉에 대하여는 1 % 미만의 오차내에 잘 일치하였으나, J-14 핵연료봉에 대하여는 8.2 %의 오차를 보였다.

또한, 발전소 공표값인 평균연소도와 비교할 때 3종류의 핵연료봉 모두가 2.4 % 이내에서 일치하는 것으로 나타났다. 이는 3개의 핵연료봉 종류에 5개의 핵연료봉 샘플을 대상으로 본 연구가 수행되었으며, 앞으로 보다 많은 화학분석자료를 이용하여 더욱 정확한 코드평가가 이루어져야 된다고 생각된다.

표 2. 사용후핵연료의 화학분석에 의한 실험값과 계산값의 비교

핵연료봉 형태	핵연료봉	발전소 공표값 (GWd/tU)	비교		
			Nd-148 정량분석 (GWd/tU)	ORIGEN-S 계산값 (GWd/tU)	% 차이
고리 1호기 14 x 14	C15	32.00	32.75	32.79	0.12
	A39	25.30	25.10	25.20	0.4
	J14	37.84	33.96	37.00	8.2

4. 결 론

사용후핵연료봉 및 시편에 대한 연소도를 파괴적인 화학분석방법(Nd-148 정량분석법)과 컴퓨터 코드계산 방법을 비교 분석 하였다. 본 연구에서 사용한 컴퓨터 코드는 핵종 재고량을 예측할 수 있는 ORIGEN-S 코드를 사용하였으며, 연소도 측정 지표핵종 Eu 154 / Cs-137의 비를 이용하여 연소도를 평가하였다. 본 연구에서 평가한 계산값에 대한 오차는 화학분석값과 8.2 %의 최대 오차를 보이고 있으나, 발전소공표 연소도와는 약 2.4 % 오차범위에서 일치하였다.

*본 연구가 과학기술부의 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었음.