

2000 추계 학술발표회 논문집

한국원자력학회

감마선측정에 의한 사용후핵연료의 핵종비 결정 오차

Errors in Determining the Ratio of Burnup Monitors from Gamma-ray Measurement of Spent Nuclear Fuels

박광준, 조일제, 김종훈, 엄성호, 박성원

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

고리1호기 사용후핵연료집합체 G23의 N1 연료봉으로부터 절단된 시편에 대하여 감마선 스펙트럼을 획득하고, 연소도 모니터 핵종인 Cs-137 와 Eu-154의 비를 결정하는데 고려해야될 오차를 분석하였다. 이러한 핵종비를 결정할 때 발생하는 주요 오차 요인으로는 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 $\pm 5\%$ 이내로 계산되었다.

Abstract

Errors in determining the ratio of Eu-154 to Cs-137 which are burnup monitors were evaluated after obtaining the gamma-ray spectra from the specimen taken from spent nuclear fuel assembly G23 discharged from Kori-1 in 1986. The errors of gamma-ray detection, regression analysis of relative efficiency and isotope ratio determination as the major error factors were considered in this work. As a result of the error analysis, error in determining the Eu-154/Cs-137 ratio appeared to be within 5 %.

1. 서론

사용후핵연료에 대한 정확한 연소도 평가는 저장, 수송, 이용, 처분 등의 관리공정에서 안정성과 경제성을 판단할 수 있는 주요한 척도중의 하나이다. 이러한 연소도 평가에 있어서 정확도는 평가과정에서 발생할 수 있는 오차를 분석하므로서 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 시스템의 오차이며, 최종 연소도 결정까지의 오차에는 전산코드 계산에 의한 오차도 포함되어야 한다. 그러나 본 연구에서는 사용후핵연료로부터 획득한 감마선스펙트럼 중에서 냉각시간을 고려하여 선택한 연소도 모니터 핵종인 Cs-137, Cs-134 및 Eu-154 에 해당하는 피이크 분석 오차, 감마선 에너지의 함수로서 검출효율곡선 회귀분석 오차, Eu-154/Cs-137 핵종비 계산 오차 등 감마선측정에 관련된 오차 분석만을 수행하였다. 전산코드 계산에 의한 오차는 사용후핵연료 시편에 대한 화학적인 정량분석 값이 결정된 이후에 이루어질 것이다.

2. 실험

(1) 측정시스템

사용후핵연료로부터 방출되는 감마선 검출은 그림1과 같이 납셀내에 설치된 시준기, 고순도 Ge 검출기와 다중채널분석기(MCA)/개인용 컴퓨터(PC)로 구성된 전자장비를 사용하여 수행하였다.

(2) 시편측정

사용후핵연료집합체 G23의 N1연료봉에서 금속조직시험용 시편 바로 옆에서 절단한 시편(연료봉 하단으로부터 1,092~1,093 mm 지점)에 대한 감마선 검출 시험은 그림1과 같은 검출시스템에서 수행되었다. 감마선 검출시 1차 및 2차 시준기는 시편 전체에서 방출하는 감마선을 수집하기 위해서 모두 제거하였는데, 이는 화학분석 방법에서 시편 전체를 용해시켜 얻는 연소도와 대등한 비교를 하기 위한 것이다. 감마선 검출 시간은 반감기가 짧은 연소도 모니터핵종을 검출하기 위하여 5,400초(1시간30분)으로 하였으며, 시준기 제거에 따른 계수율 증가를 조절하기 위하여 그림2와 같은 형태의 시준기/시편홀더를 제작하여 사용하였다.

(3) 오차분석

1) 감마선 측정 오차

측정상의 오차를 줄이기 위하여 동일 시편(G23-N1-3)에 대하여 10회 반복 측정하여 평균값과 표준편차를 계산하였다.

2) 상대검출 효율 오차

G23 핵연료의 냉각시간이 측정시점기준 약 14년이 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.

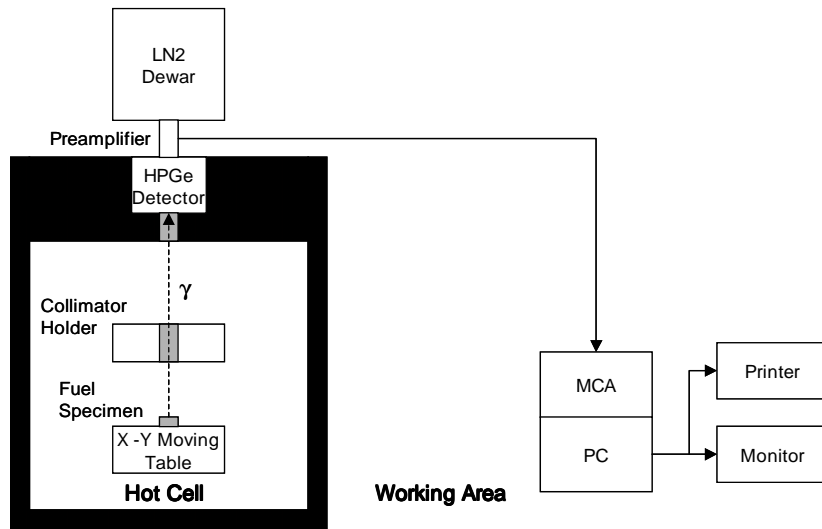


그림1. 사용후핵연료시편에 대한 감마선 검출시스템의 개요도.

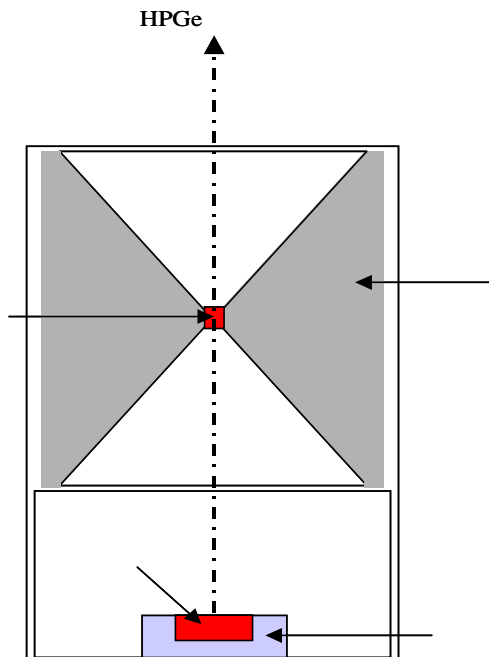


그림2. 시편 측정을 위한 시편홀더 및 시준기

3. 결과 및 고찰

연료봉 및 시편의 연소도는 감마선 분광분석으로 얻은 모니터 핵종의 비와 SCALE4.4 코드계산에 의해 얻은 모니터핵종의 비를 상관시켜 결정하였다. 즉, 코드계산에 의해서 연소도-모니터핵종비와의 관계식을 구하고, 그런 다음 감마선 분광분석에서 얻은 모니터 핵종비 값을 그 관계식에 대입하여 연소도를 구하는 방법을 사용하였다.

(1) 감마선 측정 오차

측정상의 오차를 줄이기 위하여 동일한 G23-N1-3 시편에서 10 회 측정하여 얻은 결과는 표1과 같이 나타났다. 이러한 측정횟수(n)의 증가 목적은 표준편차 결정식에서 편차를 줄이기 위한 것이다.

$$\sigma = S = \pm \sqrt{\{\sum(x_i - \bar{x})^2/(n-1)\}} \quad (1)$$

그러나 표1에서 보는 바와 같이 측정값에 대한 차이는 근소하다는 것을 알 수 있다. 이러한 결과는 한번 측정할 때 발생하는 오차나 여러 번 측정하여 계산되는 오차 사이의 차이는 거의 무시할 수 있다는 것을 의미한다. 따라서 오차를 줄이기 위하여 많은 시간을 소모해가며 여러 번 측정할 필요가 없다는 것을 실험을 통하여 확인하게 되었다.

표1. G23-N1-3 시편의 10 회 감마선 측정값

측정횟수 핵종	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Cs137	8842960.2	8848850.8	8844954.3	8850857.2	8843180.1	8854290.5	8849551.3	8871021.9	8852592.8	8836511.6
Eu154	57824.5	57135.0	56666.2	57603.7	58023.0	57472.3	57485.7	52310.0	54712.0	57268.0

(2) 상대검출효율 오차

연소도 모니터 핵종인 Eu-154에서 방출하는 여러 개의 감마선 에너지에 해당하는 피크 중에서 감마선 강도가 비교적 높은 4개의 피크를 분석하고, 또한 감마선 분지비를 고려하여 해당 에너지에서의 상대검출효율을 결정하였다. 낮은 에너지 영역에서부터 높은 에너지 영역까지의 에너지에서 검출효율을 결정하기 위해서 이러한 4개의 자료점을 기본으로 하여 회귀곡선을 그림3과 같이 얻었으며, 이 회귀곡선에 대한 오차계산은 다음 식을 이용하였다.

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

여기서 SSE는 잔차제곱합, n는 자료점의 수, y_i 와 \hat{y}_i 는 각각 독립변수인 감마선 에너지 E_i

에 대응하는 관측값 및 회귀직선을 이용하여 구한 추정값을 나타낸다.

또한 기본자료로부터 추정된 회귀선이 그 자료에 어느 정도 적합한가를 측정하는 척도인 결정계수는 다음식을 근거로 하여 계산하였다.

$$r^2 = \frac{SSR}{SST} = \frac{\sum_{i=1}^n (\hat{y}_i - \bar{y})^2}{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2} \quad (3)$$

여기서 SSR은 회귀제곱합, SST는 총제곱합을 나타낸다. r^2 값이 1에 가까울수록 데이터가 회귀선 부근에 집중되는 것이므로 회귀직선식이 의미가 있으며, 계산결과는 표2와 같다.

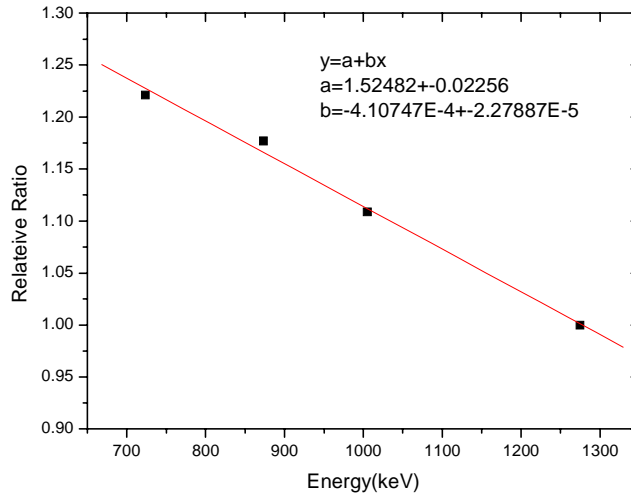


그림3. Eu-154의 4개 에너지를 이용하여 결정한 검출효율 회귀직선

표2. 회귀분석오차 분석과정에서 결정한 주요인자의 계산값

	제곱합	제곱 평균	결정비(r^2)
회귀	SSR = 0.035106	MSR = 0.035106	0.98248
잔차	SSE = 0.000626	MSE = 0.000313	
계	SST = 0.035732		

(3) 핵종비 결정 오차

G23-N1-3 핵연료 시편에 대한 감마선 측정 통계오차와 에너지의 함수로서 상대검출 효율 회귀선 결정 오차를 고려하여 연소도 모니터 핵종 Cs-137과 Eu-154 의 상대적인 원

자수 밀도를 구하였다. 이 두 핵종의 원자수밀도 비 Eu-154/Cs-137 에 대한 오차는 나뭇샘 형태의 오차의 전파 관계식을 사용하여 계산하였다.

$$\sigma = (X_1/X_2)\sqrt{(\sigma_1^2/X_1^2 + \sigma_2^2/X_2^2)} \quad (4)$$

표3은 동일시편에 대해 10회 측정하여 결정한 각각의 핵종비와 오차를 나타낸다. 표에서 보는 바와 같이 8회 및 9회 측정분에 대한 핵종비에서의 오차가 6.3 % 및 5.1 %로 나타난 것을 제외하고 나머지 8개는 5 % 이내의 오차범위 이내에서 일치하는 것으로 나타났다. 이러한 결과는 감마선 측정에 의해 5 % 이내의 정확도로 연소도 모니터 핵종비를 결정할 수 있다는 것을 의미한다.

표3. G23-N1-3 시편의 10회 측정에 의한 핵종비 및 오차

측정번호	Eu154/Cs137 핵종비	오차	(오차/핵종비) *100 (%)
1	0.0081053	0.0003335	4.11
2	0.0079797	0.0001922	2.41
3	0.0079134	0.0002032	2.57
4	0.0080564	0.0000913	1.13
5	0.0081388	0.0001642	2.02
6	0.0080434	0.0002986	3.71
7	0.0080417	0.0002015	2.51
8	0.007247	0.0004579	6.32
9	0.0076209	0.0003866	5.07
10	0.0080273	0.0001466	1.83

4. 결론

사용후핵연료 시편(G23-N1-3)에 대하여 감마선 측정을 10회 수행하여 감마선 측정 오차, 상대검출효율 회귀선 결정 오차 및 연소도 모니터 핵종비 계산 오차를 평가하였다. 평가 결과, 감마선 측정오차와 상대검출효율 회귀선 결정오차가 종합적으로 작용하는 핵종비 Eu-154/Cs-137 계산에서 10회 측정중 2회분을 제외한 나머지 측정분에 대하여 오차는 5 % 이내의 범위내에서 일치하는 것으로 나타났다.

*본 연구가 과학기술부의 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었음.