

방사선 측정 및 해석 연구*

—원자로 냉각수중의 방사능해석에 의한 결합핵연료봉의 평가—

양재춘 · 오희필 · 전재식 · 이호연 · 오현진

충남대학교 이과대학 물리학과

정 루 규

한국 에너지 연구소

박 해 용

한국과학 기술대학

= 요 약 =

중성자와 우라늄의 핵반응에 의해 생성된 핵분열생성물의 물리적 특성을 이용하여 원자로 내의 핵연료 상태를 해석하는 모델을 개선하였다. 이 모델에서는 고체 핵연료 내에서 특정 핵종의 핵분열 생성물의 생성과 이것이 원자로 냉각재까지 방출되는 과정을 계산하고 추적하여 방사능농도와 결합핵연료봉의 수를 관계짓는 방정식의 계수들을 결정한다. 핵분열생성물의 거동은 이탈(knock out)과 이동(migration) 두 부분으로 나누어 해석하였으며 트랩프 우라늄의 영향을 분리할 수 있도록 하였다. 실험자료로는 가압 경수형 원자로인 고리 원자력발전소 1호기의 1차 냉각재를 분석해서 얻은 I-131과 I-133의 방사능 강도를 이용하였다. 이 실험자료와 위 방정식에서 구한 방사능 강도로부터 구한 결합 핵연료의 수는 제 3 주기에서 9.34 ± 1.13 개 제 6 주기에서 0.294 ± 0.092 개로 나타났다.

를 주는 옥소동위원소를 사용하였다.

I. 서 론

중성자와 우라늄이 핵반응에서 생성되는 핵분열생성물이 핵연료에서 방출되는 양을 평가하는 것은 원자로의 안전적인 운용이나 사고시 방사능누출량[1] 계산에 기초자료가 되고 핵연료의 파손여부를 알 수 있는 자료가 된다.

본 연구논문은 이미 발표한 핵연료에서 핵분열생성물의 방출기구에 관한 연구[2]의 계속 연구로서, 핵분열생성물의 방사능강도를 계산할 때, 그의 선행 핵종의 제거율을 고려하여 새로운 모델 방정식을 세웠다.

핵분열생성물 중에서 반감기가 적절히 길고 안정성이 있어 핵분열생성물의 거동을 추적하는데 좋은 자료

중성자와 우라늄의 핵반응에서 생성되는 핵분열생성물의 양을 계산하고 이것이 고체핵연료에서 방출하는 양을 계산하였다. 핵연료내에서 방출량을 계산할 때 반조, 이탈 및 이동[3] 세 가지로 구분하여 생각하였다. 핵연료내에서 평형방정식을 세워 핵연료와 피복재 사이의 갭까지 방출량을 계산하고, 핵연료와 피복재사이 및 냉각재에서의 평형방정식을 세워 방출하는 핵종의 방사능강도를 계산하고, 측정치와 비교하여 핵연료의 파손 여부를 분석하였다.

원자로 냉각재에서 얻은 방사능강도 중에는 핵연료에서 방출된 것과 트랩프우라늄에서 방출된 것의 합으로 보고 결합핵연료수와 트랩프 우라늄량을 동시에 고려하는 모델 방정식을 설정하여 계산하는 방법을 도입하였다. 원자로의 1차 냉각재에서의 핵종의 제거율을 핵연료에서 방출된 핵분열생성물과 트랩프우라늄에서 나온 것과를 구분해서 해석하는 새로운 방법을 시도하

* 본 연구는 1985년도 문교부 기초 과학 육성 연구비의 지원에 의하여 수행한 방사선 측정 및 해석 연구의 일부로 수행된 것임.

였다.

실험치로는 고리 원자력발전소의 1차 냉각재에서 얻은 ^{131}I 및 ^{133}I 의 방사능 강도를 이용하였다.

II. 이론

핵분열생성물이 중성자와 우라늄의 핵반응에 의해 생성되어 고체 핵연료내에서 방출되고, 이것이 핵연료 피복재를 통해서 원자로 냉각재까지 나오는 과정을 매 단계마다 모델을 세워 계산하였다.

1. 선원함의 계산

중성자와 우라늄이 핵반응해서 생성되는 핵분열생성물의 양은 시간의 함수로서 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$\frac{dB_i}{dt} = \sum_{j=1}^M l_{ij} \lambda_j B_j + \phi \sum_{K=1}^M f_{iK} \sigma_K B_K - (\lambda_i + \phi \sigma_i) B_i + F_i, \quad i=1, 2, \dots M \quad (1)$$

여기서

B_i : i 핵종의 원자밀도

M : 핵종 수

l_{ij} : j 핵종이 봉괴하여 i 핵종이 되는 율

λ_i : i 핵종의 봉괴상수

ϕ : 열중성자속

f_{iK} : k 핵종이 중성자를 흡수하여 i 핵종이 되는 율

σ_K : k 핵종의 중성자 흡수단면적

F_i : i 핵종의 생성율

이다.

옥소 동위원소를 중심으로 한 봉괴연쇄[4]에 대한 그림이 그림 1에 표시되어 있다.

2. 핵연료내에서의 방출

핵연료내에서의 핵분열생성물의 방출기구는 다음 3 가지 유형으로 구분해서 생각하였다.

가. 반조

핵연료 표면으로부터 멀리 떨어져 있지 않는 거리에서 일어나는 핵분열파편은 핵연료와 피복재 사이로 직접 방출된다. 이렇게 방출되는 i 핵종의 수 N_{Ri} 는 다음과 같이 주어진다[5].

$$N_{Ri} = B_i \frac{R_l}{d} \cdot \frac{h}{R_s} \left(2 - \frac{h}{R_s} \right) \quad (2)$$

여기서

d : 핵연료 죽경

h : 핵연료와 피복재간의 간격 (gap)

R_l : 핵연료내에서 핵분열 파편의 반조 거리

R_s : 캡내에서의 반조 거리이다.

피복재가 손상되어 핵연료가 노출되어 있다면 상기 식은

$$N_{Ri} = B_i \cdot \frac{R_l}{d} \quad (3)$$

이 된다.

나. 분출에 의한 이탈

반조되는 핵분열생성물 중 일부는 핵연료표면을 통과할 때 핵연료의 적은 양을 함께 떠어 낸다. 이때 캡으로 떨어져 나간 파편속에 i 핵종이 들어 있으며 그 갯수는[5]

$$N_{ki} = \frac{4}{\pi} \cdot \frac{R_l}{d^3 l_0} V_m \cdot B_i N_i \quad (4)$$

이다. 여기서

l_0 : 핵연료의 질이

V_m : 이탈되는 체적

N_i : 핵연료봉 1개당 포함된 i 핵종의 갯수이다.

다. 이동

고체 핵연료의 결정사이를 통하여 확산되는 핵분열생성물의 양을 정확히 계산하는 것은 상당히 복잡한 문제이지만 본 논문에서는 Bayer 와 Hahn[6]의 계산방법을 채택하였다.

핵연료내에서의 확산되는 핵종의 평형 방정식은

$$\frac{dN_{mi}}{dt} = F_{mi} B_i - (\lambda_i + \nu_{1i}) N_{mi} \quad (5)$$

이며, 여기서 F_{mi} 는 i 핵종중 이동에 참여하는 분율이고, ν_{1i} 는 방출계수인데

$$\nu_{1i}(T) = \nu_{0i} \exp(-Q/RT) \quad (6)$$

이다. 여기서

Q : 활성화 에너지

R : 가스 상수

T : 온도

이다.

확산되어 캡으로 방출되는 갯수는

$$N_{Di} = \nu_{1i} N_{mi} \quad (7)$$

이 된다.

라. 핵연료내에서의 평형 방정식

핵연료내에서 핵분열생성물의 질량평형방정식은

$$\frac{dN_{fi}}{dt} = B_i - (N_{Ri} + N_{Ki} + N_{Di}) - \{\lambda_i + (\sigma \phi_c)_i\} N_{fi} \quad (8)$$

이다. 여기서

N_{fi} : 핵연료내에서의 핵종 i 의 수

σ : 중성자 흡수단면적

ϕ_c : 중성자 선속
이다.

3. 갭에서의 평형 방정식

핵연료와 피복재 사이에서 평형 방정식은

$$\frac{dN_{gi}}{dt} = (N_{Ri} + N_{Ki} + N_{Di}) - (\nu_{2i} + \lambda_i + \sigma_i \phi_c) N_{gi} \quad (9)$$

으로 쓸 수 있다. 여기서 N_{gi} 는 갭서의 핵종 i 의 수이며 ν_{2i} 는 갭에서의 방출계수이다. 핵연료가 파손되어 있을 경우 방사능핵종의 방출율은 갭내의 축적된 양에 비례한다.

$$N_{Gi} = \nu_{2i} N_{gi} \quad (10)$$

이다.

4. 냉각재에서의 평형 방정식

원자로 1차 냉각재에서 평형방정식은

$$\frac{dN_{Ci}}{dt} = N_{Gi} - \{\lambda_i + \beta_1 + (\sigma_i \phi)_c\} N_{Ci} \quad (11)$$

이 된다. 여기서 N_{Ci} 는 냉각재중 핵종 i 의 수이며 β_1 는 오염제거율이다.

5. 트랩프 우라늄양의 계산

원자로 1차 냉각재 중에 있는 핵분열생성물은 크게 두가지로 생각할 수 있다. 핵연료가 파손되어 연료 내부에서 방출되어 나오는 것과 이미 전에 파손된 우라늄덩어리가 냉각재에 녹아 있거나 피복재에 붙어 있는 것이다. 이 두가지 양을 분리해서 생각하면 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$m_i = a \cdot S \lambda_i \left(N_{Ci} D + \frac{\nu_{1i} + \lambda_i}{\nu_{1i}} N_{Ki} \varphi \right) \quad (12)$$

여기서

m_i : i 핵종의 방사능강도 측정치

$$a = (3.7 \times 10^{10})^{-1}$$

$$S = \frac{10^6}{W_p}$$

$$D = n/N_0$$

$$\varphi = G/M$$

W_p : 원자로 1차 냉각수의 양(g)

n : 파손 핵연료수

N_0 : 핵연료 봉수

G : 오염 우라늄 양

M : 핵연료 총량

이다.

6. 핵분열생성물의 고려

핵분열생성물중 육소 핵종을 생각할 때 직접분열에서 생성되는 것과 선행핵종인 Te 또는 Sb핵종이 생성되었다가 핵붕괴에 의해 생성되는 것도 있다. 오염 제거율을 고려할 때 이탈에 의한 생성율과 이동에 의한 생성율이 다르다. 따라서 두가지를 나누어 고려해야 한다. 이탈에 의한 생성률을 $\eta_i \sum Y_i$ 라 하고 이동에 의한 생성률을 $\zeta_i \sum Y_i$ 라 하면

$$m_i = a \cdot S \lambda_i \left(\zeta_i N_{Ci} D + \frac{\nu_{1i} + \lambda_i}{\nu_{1i}} \eta_i N_{Ki} \varphi \right) \quad (13)$$

이 된다. 여기서 η_i 는 Te 이전 핵종의 오염 제거율에 대한 육소 핵종의 오염 제거율의 비로 나타낼 수 있고, $\eta_i + \zeta_i = 2$ 라 쓸 수 있다.

(13)식에서 m_i 는 실험적으로 얻은 육소 핵종의 방사능 강도이며, D 와 φ 를 제외한 모든 변수는 아는 값들이다. 그러므로 이 수식에 의해 D 와 φ 를 얻을 수 있고, 이로부터 결합 핵연료의 수와 트랩프 우라늄양을 구할 수 있다.

III. 결과 및 논의

제 II장에서 기술한 이론적인 모델을 컴퓨터로 계산하기 위하여 프로그램을 개발하였다. 계산에 사용한 방사성물질의 반감기, 핵단면적 및 붕괴연쇄 자료는 ENDF/B-V, 핵분열 생성율 라이브러리[7]에서 발췌했으며, 핵분열생성물의 붕괴연쇄에 대한 자료가 표 1과 그림 1에 수록되어 있다.

시험계산에 사용된 첫번째 실험치로는 고리 원자력 발전소 1호기의 제 3주기 동안에 핵연료 상태를 감시

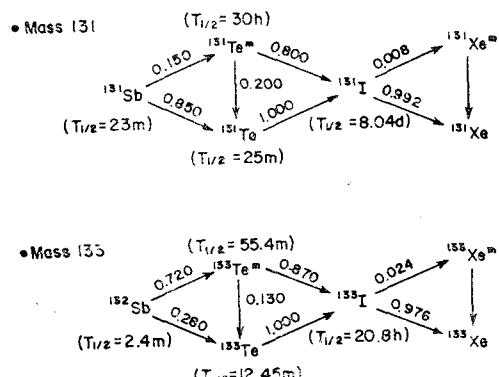


Fig. 1. Nuclear fission products and its decay chains.

Table 1. Nuclear data used in the calculation

Isotope	Half-life(s)	Independent fractional yield (%)	Daughter	Branching ratio
^{131}Sb	1.380×10^3	1.59×10^0	$^{131}\text{Te}^m$	0.150
$^{131}\text{Te}^m$	1.080×10^5	1.90×10^{-1}	^{131}Te	0.850
^{131}I			^{131}I	0.800
^{131}Te	1.500×10^3	1.19×10^{-1}	^{131}I	1.000
^{131}I	6.947×10^5	4.15×10^{-2}	$^{131}\text{Xe}^m$	0.008
^{133}Sb	1.440×10^2	2.08×10^0	$^{133}\text{Te}^m$	0.720
$^{133}\text{Te}^m$	3.324×10^2	2.88×10^0	^{133}I	0.870
^{133}Te	7.470×10^3	1.32×10^0	^{133}Te	0.230
^{133}I	7.488×10^4	1.65×10^{-1}	$^{133}\text{Xe}^m$	0.024
			^{133}Xe	0.976

Table 2. Failed fuel evaluation for cycle 3 of Kori Unit 1

Number	Measured Activity($\mu\text{Ci/g}$)		Number of Failed Fuel	Tramp Uranium (kg)
	^{131}I	^{133}I		
1	0.22	0.48	10.21	0.66
2	0.27	0.70	11.84	1.05
3	0.22	0.60	9.39	0.92
4	0.23	0.72	9.31	1.17
5	0.30	0.90	12.36	1.44
6	0.23	0.87	8.50	1.49
7	0.24	0.93	8.75	1.60
8	0.24	0.95	8.64	1.64
9	0.27	1.01	10.21	1.72
10	0.25	1.13	8.24	2.01
11	0.27	1.30	8.47	2.34
12	0.29	1.28	9.73	2.27
13	0.30	1.41	9.48	2.53
14	0.31	1.41	10.29	2.51
15	0.28	1.34	8.89	2.41
16	0.27	1.37	8.27	2.49
17	0.27	1.24	8.91	2.21
18	0.27	1.30	8.47	2.34
19	0.27	1.31	8.41	2.37
20	0.28	1.43	8.34	2.61
Average Value			9.34 ± 1.13	1.89 ± 0.59

Table 3. Failed fuel evaluation for cycle 6 of Kori Unit 1

Number	Measured Activity($\mu\text{Ci/g}$)		Number of Failed Fuel	Tramp Uranium (kg)
	^{131}I	^{133}I		
1	2.549×10^{-2}	2.309×10^{-1}	0.215	0.454
2	3.778×10^{-2}	3.408×10^{-1}	0.325	0.669
3	3.935×10^{-2}	3.489×10^{-1}	0.371	0.684
4	2.389×10^{-2}	2.197×10^{-1}	0.183	0.432
5	3.857×10^{-2}	3.726×10^{-1}	0.198	0.736
6	3.904×10^{-2}	3.855×10^{-1}	0.155	0.763
7	4.759×10^{-2}	4.380×10^{-1}	0.362	0.862
8	8.792×10^{-2}	3.415×10^{-1}	0.329	0.670
9	3.921×10^{-2}	3.366×10^{-1}	0.430	0.658
10	4.530×10^{-2}	4.114×10^{-1}	0.375	0.809
Average Value			0.294 ± 0.092	0.674 ± 0.131

하기 위해 1차 냉각재를 분석해서 얻은 방사능 강도[8]로부터 결합 핵연료의 수와 트램프 우라늄의 양을 계산하였다. 그 결과가 표 2에 수록되어 있는데 이표의 2번째 열과 3번째 열의 방사능 강도는 실험적으로 얻은 값이 있으며, 4번째 열에 결합 핵연료 수가 표시되어 있으며, 5번째 열에 트램프 우라늄의 양이 표시되어 있다. 결합핵연료의 수는 평균 9.34 ± 1.13 개이며, 트램프 우라늄양은 평균 1.89 ± 0.59 kg으로 전 논문[2]의 값인 9.7 ± 0.8 개 및 1.8 ± 0.5 kg과 비교하면 약간의 차이를 보이고 있다. 이는 II-6절에서 고려한 이탈에 의한 생성율과 이동에 의한 생성율을 별개로 분리해서 계산했기 때문이다. 또 이는 오염 제거율과도 관련이 있으며 이탈에 의한 핵종의 수(실험치)는 오염 제거율 때문에 실제값보다 적게 나타나기 때문이다. 원자로 냉각재를 채취하여 방사능 강도를 측정할 때나 sipping test를 할 때 문제가 되는 것은 피복재 표면에 붙어 있는 우라늄에서 나오는 핵분열생성물 때문에 생기는 오차이다. 그래서 II-6절에서 고려한 것이 이 부분을 보정하여 해석하기 위한 것이다. 핵분열생성물이 고체핵연료내에서 방출할 때의 계수(ν_{1i})는 USNRC[9]의 값 $1.3 \times 10^{-8} \text{ S}^{-1}$ 을 사용했으며, 핵연료와 피복재 간의 gap을 거쳐 냉각재까지 방출하는 계수(ν_{2i})의 값은[10] $1.27 \times 10^{-5} \text{ S}^{-1}$ 을 사용했다.

두번째 데이터는 고리 원자력발전소 1호기의 제 6 주기 동안에 1차냉각재에서 채취한 시료를 분석하여 핵분열생성물의 방사능강도를 측정하였다. 겹출기로는 분해능이 좋은 Ge(Li)겹출기를 사용하였다.

시료내에 있는 여러종류의 방사능핵종에서 나오는 감마에너지 스펙트럼을 분석하고 그의 강도를 측정하기 위하여 전산화된 다중 파고분석기를 사용하였고 스펙트럼 해석에는 GAMMA[11] 프로그램을 사용하였다. 이 프로그램을 사용하기 위해서는 마리 각 핵종에 대한 에너지 스펙트럼을 라이브러리로 만들어 컴퓨터에 내장시켜 두어야 한다. 시료에서 얻은 에너지 스펙트럼과 이 라이브러리에 내장된 스펙트럼을 비교하여 핵종을 분석하고 그의 방사능강도를 계산하였다. 이 라이브러리를 만드는데 사용한 핵자료는 문헌[12]에서 발췌했다. 핵분열생성물중에서 반감기가 비교적 길고 안정도가 높은 ^{131}I 과 ^{133}I 핵종의 방사능강도를 측정하여 이론식에 의한 계산치와 비교하는 자료로 사용하였다.

고리 원자력발전소 1호기의 제 6 주기동안에 1차 냉각재에서 채취한 시료를 분석해서 얻은 핵분열생성물의 방사능강도가 표 3의 제 2열과 제 3열에 수록되어 있으며 이에 대한 해석결과가 표 3의 제 4열과 제 5열에 수록되어 있다. 이 결과를 보면 순상된 핵연료 수는 1개미만이고 트램프우라늄양도 0.67 ± 0.13 kg으로 아주 적게 나타나고 있다. 이것은 제 6 주기에서는 시료채취시까지 운전하는 동안에는 결합 핵연료가 없는 아주 전전한 상태인 것을 알 수 있다.

IV. 결 론

증성자와 우라늄의 핵반응 결과 생성된 핵분열생성

물의 고체 핵연료내에서의 방출방식을 기술한 이론식에 의해 계산한 방사능강도와 원자로 1차냉각재에 있는 핵분열생성물의 방사능강도를 비교함으로써 결합핵연료의 수와 트랩프 우라늄양을 계산할 수 있는 새로운 방법을 도입하였다. 새로이 도입한 해석방법중에서 이탈에 의한 핵분열 생성율과 이동에 의한 생성율을 분리해서 해석한 결과, 전 논문[2]에 비해 핵연료 수는 0.3개가 감소하였으며 트랩프 우라늄양은 0.1 kg이 증가하였다. 이것은 우리가 해석할 때 사용한 실험치 중에서 이탈에 의한 원자의 수가 오염제거율 때문에 실제값보다 적게 나타나기 때문이다. 실제로 원자로 냉각재를 채취해서 방사능강도를 측정하여 핵연료 결합율을 평가할 때 피복재표면에 붙어있는 우라늄에서 나오는 핵분열 생성물 때문에 많은 어려움이 있다. 본 해석방법은 이 트랩프 우라늄을 분리하여 계산할 수 있어 보다 신빙성있는 핵연료 결합율을 얻을 수 있도록 한다.

본 연구 결과의 응용으로는 원자로를 운전하면서 측정하는 핵분열 생성물의 방사능강도로부터 핵연료 상태를 용이하게 평가할 수 있어 원자력발전소의 안전운전에 기여할 수 있다.

감사의 글

본 연구는 1985년도 문교부 기초 과학 육성 연구비의 지원으로 이루어졌다. 연구비를 지원해 준 문교부 당국에 깊은 감사를 드린다. ENDF/B-V, 핵분열 생성물 라이브러리를 제공해 준 IAEA의 Nuclear Data Section 당국에도 감사를 드린다

참 고 문 헌

- 1) R. Wilson et al. *Rev. Mod. Phys.*, Vol. 57, No. 3, Part II, (1985).
- 2) 양재춘 외, 새물리 Vol. 25, No. 4, 401(1985).
- 3) E.E. Gruber, *J. of Applied Physics*, 38, 243 (1967).
- 4) *Reactor Physics Constant*, ANL-5800, Argonne National Laboratory, 4-5(1963).
- 5) T. Aoki, 일본원자력학회지, 25, 102(1983).
- 6) L.E. Beyer and C.R. Hann, *Prediction of Fission Gas Release from UO₂ Fuel*, BNWL-1875, Battelle Pacific North West Laboratories, (1974).
- 7) ENDF/B-V, *Fission Product Library*(Rev. 2) IAEA-NPS-25, IAEA, Vienna(1984).
- 8) 양경린외, “원자력발전소 냉각재 수질 관리 기술 확립”, KAERI/RR-377/82, 한국에너지연구소 (1983).
- 9) Regulatory Guide, NUREG-0017, U.S.N.R.C. (1976).
- 10) T. Aoki, 일본원자력학회지, 25, 29(1983).
- 11) *Operator's Manual, Environment Analysis, Analytical Software for Germanium Detectors, EG & G and ORTEC*(1980).
- 12) C.M. Ledere et al., *Table of Isotopes*, 6th ed., Wiley-Interscience, New York(1967).

Measurement and Analyses of Radiation

Assessment of Defected Fuel by Analysis of Reactor Coolant Activities

Jae-Choon Yang, Hi-Peel Oh, Jae-Shik Jun, Ho-Yon Lee, Heon-Jin Oh

Department of Physics, Chungnam National University

Moon-Kyu Chung

Korea Advanced Energy Research Institute and

Hae-Yong Park

Korea Institute of Technology

=Abstract=

An improved method of assessing fuel status by analysis of the fission product in the reactor coolant system is proposed. The release mechanism of specific fission products is established for determination of the coefficients in the equations which relate the radioactivities with the amount of defected fuel. Knock-out and migration models are employed in the formulation of the release mechanism. The influence of the tramp uranium is quantified.

Sample calculations were made for KNU 1 reactor system using the I-131 and I-133 concentrations in the primary coolant. The estimated number of defected fuel pins in the third and sixth cycles appeared to be 9.34 ± 1.13 and 0.294 ± 0.092 , respectively.