

CASMO-3용 E63LIB/A 라이브러리 생산 및 혼합핵연료에 대한 검증

주형국, 김정도, 길충섭, 김영진, 정형국, 노재만

한국원자력연구소

요 약

CASMO-3 코드의 기존 라이브러리들을 혼합핵연료 격자문제에 대한 검증계산을 수행하였다. CASMO-3 코드와 함께 도입되어 사용되고 있는 E4LIB-JA 라이브러리는 플루토늄의 함량이 낮고, fissile 플루토늄 원소의 비율이 높은 조성의 혼합핵연료로 적용범위가 한정되었다. 혼합핵연료에 사용할 목적으로 Studsvik사가 수정한 40에너지군의 E4LIB-KA 라이브러리는 플루토늄의 함량이 약 12% 이내로 제한되기는 하지만 비교적 혼합핵연료 계산에 유용한 것으로 나타났으나, 라이브러리의 개선된 내용이 구체적으로 알려지지않아 앞으로 이를 사용자가 유지 관리하는데 문제점이 따르고 있다. 따라서 혼합핵연료 계산을 위하여 CASMO-3용 E63LIB/A 70에너지군 라이브러리를 ENDF/B-VI 자료로부터 생산하였으며, 이를 알려진 혼합핵연료 임계실험자료를 대상으로 검증계산을 수행하여 그 유용성을 입증하였다.

1. 배 경

현재 CASMO-3 코드¹의 라이브러리로 사용되고 있는 E4LIB/JA 라이브러리는 기본 평가 핵자료로 ENDF/B-IV를 사용하고 있으나 이전부터 사용되던 EPRI-CPM 라이브러리 자료의 상당부분이 그대로 남아있고 근년에 추가된 핵종들은 JEF-1 자료로부터 생산된 것들이다. 감속재로서는 경수의 수소에 대한 열중성자 영역 산란단면적이 300°K와 600°K 사이의 온도의 함수로 주어졌는데 반해, 중수의 중수소에 대해선 3가지 온도에 대해서만 주어졌어 철저히 경수로 위주로 자료가 준비되어 있다. 수록된 자료는 총 94 핵종에 대한 것으로 액티나이드 중에서는 ²³⁵U, ²³⁶U, ²³⁸U, ²³⁹Pu, ²⁴¹Am 그리고 ^{242m}Am에 대해서만 공명영역의 공명 적분 자료를 갖고 있다. 핵분열 생성물과 흡수재 등의 자료는 300°K의 흡수단면적 만을 수록하고 있다. 흡수재로 사용되는 Ag, In, Hf 등에 대해선 300°K와 600°K에 대한 공명 적분 자료를 싣고 있어 이들의 자기차폐 효과를 고려할 수 있게 하고 있다. 한편 CASMO-3에서는 라이브러리 내에는 없으나 코드속에 ¹³⁵I, ¹⁴⁹Pm 등과 같은 일부 핵자료를 직접 수록하여 계산하고 있다. 중요 핵종에 대해선 ENDF/B-IV로부터

생산하고, ^{238}U 자료의 일부는 경수로 핵계산에 맞도록 수정되었다. 감속재와 Zircaloy에 대한 자료, 그리고 공명적분자료만이 변화하는 온도를 고려할 수 있고, 다른 핵종에 대한 자료는 기본온도인 300°K 의 자료만 이용될 수 있다. 핵분열생성물 수율 자료는 8가지 핵종에 대한 자리를 마련하고 있으나 실제로 실려있는 핵종은 ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu 그리고 ^{241}Pu 의 5가지로 나머지는 없는 것으로 처리하고 있다.

2. E63LIB/A 라이브러리 생산

기본 평가 핵자료로는 ENDF/B-VI의 Release 3까지에 속해있는 핵종을 우선으로하고 문제점이 발견된 몇가지 핵종, 그리고 없는 핵종에 대해선 다음과 같은 각종 라이브러리로부터 생산되었다. Al은 Release 3에도 수록되어 있으나 문제점이 지적되고 있어 처음 공개된 자료를 사용했으며 Zircaloy-2는 ENDF/B-IV, Sn은 ENDL-84, Pb는 JENDL-3.2, $^{242\text{m}}\text{Am}$ 과 ^{242}Cm 는 JEF-2.2로부터 생산되었다.

ENDF6-format 자료는 NJOY94.61 처리코드의² RECONR, BROADR, UNRESR, THERMR 및 GROUPR을 거치면서 공명영역 단면적이 생산되고 온도에 따른 Doppler 효과를 고려한 단면적으로 처리된 후, 다시 배경 단면적에 따른 자기차폐된 단면적 자료나 열중성자에 대한 산란 매트릭스 자료도 처리되거나 추가되어 70군의 단면적 자료로 생산되었다. GROUPR의 70군 자료를 CASMO 라이브러리의 format으로 변환하기 위해 CASMOR 루틴을 이용하여 CASMO 라이브러리 format으로 변환하고 이들을 편집하였다.

새로 만들어진 E63LIB/A 라이브러리는 기존 E4LIB/JA속에 수록된 94종에 Zirconium과 Tin을 추가하여 총 96 핵종 자료를 수록하고 있다. 이중 81 핵종은 새로운 자료이고 혼합물 자료, 가상핵종 등은 E4LIB/JA의 자료를 그대로 이용하였다. 새로운 자료의 특성은 다음과 같다.

- 수록순서와 ID 번호는 E4LIB/JA 라이브러리의 형식을 따랐으며, Zirconium과 Tin 원소에 대한 라이브러리를 ENDF/B-VI로부터 추가생산하여 새로운 ID 번호를 부여하였다.
- 온도변화 효과를 고려해야 할 핵종들은 필요한 영역의 유효 단면적을 내삽과정으로 선택할 수 있도록 온도 영역을 300°K 에서 900°K 혹은 1500°K 까지 확장하였다.
- 공명영역의 자기차폐를 위한 공명 적분 자료를 가진 악티나이드 핵종수를 ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am , $^{242\text{m}}\text{Am}$ 의 9종으로 늘렸다. 이중에서 ^{242}Pu 는 공명영역 하한을 4eV 로부터 0.625eV 로 확장하여 2.7eV 에서의 공명에 의한 자기차폐 효과를 고려할 수 있게 하였다.
- 핵분열 생성물 수율(Yield) 자료는 ENDF/B-VI Fission Product File 자료로서 다음 8핵종 전부 수록하였다. 즉 ^{235}U , ^{236}U , ^{237}Np , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu 의 자료가 포함되어 있다.

- 원자량, 분자량 등은 "The 1993 Atomic Mass Evaluation," G. Audi and A.H. Wapstra, 그리고 1995년 1월 시점의 BNL NNDC의 온라인 NUDAT 서비스 자료를 이용하였다.
- B, Cr, Fe, Ni 원소 자료는 각각의 동위원소 자료를 천연함량으로 가중처리하였다.
- 핵분열 생성물 자료는 600 °K, Curium 핵종 자료는 900 °K에서의 자료이며, 악티나이드 핵종의 자료는 전부 300, 600, 900 및 1500 °K 온도에서의 공명적분 자료와 배경 단면적에 대한 자료가 생산되었다.

이상에서와 같이 평가핵자료를 처리하여 생산된 70군 자료를 이용하여 몇가지 벤치마크 문제에 대하여 분석한 결과를 바탕으로 ^{238}U 의 공명 적분 자료와 핵분열 단면적의 일부를 보정하였다. 또한 플루토늄을 사용하는 혼합 산화물 핵연료의 연소를 고려하여 연소사슬 속에 있는 가상 핵종의 붕괴수율도 일부 조정되었다.

3. E63LIB/A 라이브러리 검증

새로 생산된 E63LIB/A 라이브러리를 이용하여 혼합핵연료에 대한 검증 계산을 수행하기에 앞서 CSEWG³추천 TRX 및 BAPL 우라늄핵연료 문제를 대상으로 검증계산을 먼저 수행하였다. E63LIB/A 라이브러리를 검증하기 위한 혼합산화물 핵연료 임계실험은 1960년대 및 1970년대에 수행된 ESADA⁴, PNL⁵ 및 Saxton⁶ 실험이며, 연소계산을 검증할 만한 적절한 실험이 없는 실정에서 OECD/NEA의 Nuclear Science Committee에서 수행한 Working Party on Physics of Plutonium Recycling(WPPR) Phase 1⁷ 문제를 해석하여 다른 코드결과와 비교하였다.

ESADA 임계실험에 사용된 혼합핵연료에는 플루토늄의 함량이 2%로 비교적 적으며 플루토늄 원소의 조성비는 ^{239}Pu 와 ^{240}Pu 가 각각 약 92%와 8%로 되어있다. ESADA 임계실험에서의 핵연료 배열은 case-2 및 case-5를 제외한 나머지는 실린더 형태로 배열되어 있으며, 핵연료의 격자간격은 0.69인치 부터 1.38인치 까지로 되어있다. PNL 임계실험은 ESADA 실험에 사용된 동일한 핵연료가 사용되었으며, 다만 실험 시기가 서로 달라 ^{241}Pu 원소의 방사붕괴에 의한 ^{241}Pu 및 ^{241}Am 원소의 수밀도 만이 약간 차이가 난다. PNL 실험에서 핵연료는 실린더 형태로 배열되어 있으며, 사용된 핵연료 격자는 0.7인치, 0.87인치 및 0.99인치이다. Saxton 임계실험에서 사용된 핵연료에는 6.6%의 플루토늄이 함유되어있으며, 플루토늄의 조성비는 ESADA 및 PNL 경우와 유사하다. 핵연료들은 직사각형 형태로 배열된 case-1을 제외하고는 모두 정방형 형태로 배열되어 있다. 핵연료의 격자간격은 0.52인치 부터 1.04인치 까지로 되어있다. 이 실험들에 대한 검증계산은 단위격자 구조에 대하여 수행하였으며 측정된 buckling 자료를 사용하여 중성자의 누출을 고려하였다. OECD/NEA의 WPPR 혼합핵연료 검증문제는 단위격자로 구성된 문제로서 문제 A는 플루토늄의

함량은 12.5 w/o이고, 플루토늄의 조성비는 ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu 원소에 대하여 각각 4.0, 36.0, 28.0, 12.0, 20.0 w/o로 fertile 원소의 존재비율이 비교적 높으며, 문제 B는 플루토늄의 함량이 4.0 w/o이며, 플루토늄의 조성비는 경수로의 방출 우라늄핵연료에서의 조성비인 ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu 원소에 대하여 각각 1.8, 59.0, 23.0, 12.2, 4.0 w/o로 되어있다.

우라늄핵연료 임계실험에 대한 결과는 표1에서와 같이 유효증배계수에 있어서는 실험값과 최대 0.43% 차이를 보였다. 비교할 수 있는 다른 인자들에 있어서도 거의 실험오차 범위에서 실험치와 일치하였다. 표2에는 혼합핵연료 노심인 ESADA, PNL 및 Saxton 임계실험에 대한 유효증배계수 계산 결과가 수록되어 있는데, 일부 Saxton 임계실험을 제외하고는 모두에서 실험치와 잘 일치하고 있음을 알 수 있다. Saxton-1, 3 및 4의 경우 유효증배계수가 실험치와 1% 이상 차이를 보이는 이유는 구체적으로 분석이 필요한데, 단위격자 계산과는 달리 buckling을 사용하지 않고 임계노심 전체에 대하여 MCNP코드를 사용하여 계산한 경우 각 case별 유효증배계수가 임계값과의 차이가 크지 않았다. 따라서 단위격자 계산에서 사용한 buckling 측정치에 대한 오차도 그 원인중에 하나로 판단된다. 표2에서 CASMO-3의 균정수 라이브러리 차이에 의한 효과는 크게 나타나지 않고 있는데, 이는 이들 실험에 사용한 핵연료의 플루토늄 함량이 그리 많지 않고, fissile 플루토늄이 다량으로 존재하는 조성비를 가졌기 때문이다. 표3과 같이 WPPR Phase 1 문제 B의 경우도 라이브러리에 의한 차이가 크지 않다. 그러나 플루토늄의 함량이 12.5%로 비교적 높고, fertile 플루토늄의 원소가 다량으로 존재하는 문제 A의 경우, E4LIB/JA 라이브러리의 결과는 다른 결과들과 심한 차이를 보이고 있으나, E63LIB/A의 결과는 외국의 다른 계산결과들의 평균치와 유사한 IKE의 결과나 혼합핵연료에 사용할 목적으로 Studsvik사가 수정한 E4LIB-KA와 비슷한 결과를 나타내고 있다.

4. 결론 및 논의

혼합핵연료 계산을 위한 CASMO-3의 70 에너지군의 E63LIB/A 라이브러리를 ENDF/B-VI 자료로 부터 생산하였으며, 이를 알려진 우라늄 핵연료 및 혼합핵연료 임계실험자료를 대상으로 검증 계산을 수행하였다. CASMO-3코드의 E4LIB-JA 라이브러리는 플루토늄의 함량이 낮고, fissile 플루토늄 원소의 비율이 높은 혼합핵연료로 적용범위가 한정되는 것으로 나타났으며, 40에너지군의 E4LIB-KA 라이브러리는 플루토늄의 함량이 약 12% 이내로 제한되기는 하지만 비교적 혼합핵연료 계산에 유용한 것으로 나타났다. 그러나 E4LIB-KA 라이브러리의 개선된 내용은 구체적으로 알려지지 않아 사용자가 앞으로 이를 유지 관리하는데 문제점이 있다. E63LIB/A 라이브러리의 경우 혼합핵연료에 대해 유용하게 사용될 수 있음을 확인하였으며, 앞으로 다른 검증문제들에 대한 분석을 통해 미비한 점을 정비하고 보완할 계획이다.

참고문헌

1. M Edenius et al, "CASMO-3: User's Manual, Ver. 5.1," STUDSVIK/NEA-90/10, May 1990.
2. R.E. MacFarlane, D.W. Muir, "The NJOY Nuclear Data Processing System, Version 94," LA-12740-M, October 1994.
3. ENDF-202, Cross Section Evaluation Working Group Benchmark Specifications, BNL-19302, 1974. (Revised 11-1981)
4. R.D.Leamer et al, "PuO₂-UO₂ Fueled Critical Experiments", WCAP-3726-1, July 1967.
5. R.I. Smith and G.J.Konzek, "Clean Critical Experiment Benchmarks for Plutonium Recycle in LWRs," EPRI-NP-1966, Vol.1, April 1976,
6. E.G.Taylor, "Saxton Plutonium Program: Critical Experiments for the Saxton Partial Plutonium Core," WCAP-3385-54 (EURAEK-1493), December 1965.
7. Physics of Plutonium Recycling Volume II: Plutonium Recycling in PWRs, OECD/NEA,1995.

표 1. 우라늄핵연료 임계실험에 대한 CASMO-3 라이브러리 검증계산 결과

Experiments	Quantity	실험값(오차)	계산값	C/E	diff.(%)
TRX-1	k_{eff}	1.0	0.99824	0.9982	-0.18
	ρ^{28}	1.320 (1.59%)	1.3293	1.0070	0.70
	δ^{25}	0.0987 (1.01%)	0.0960	0.9726	-2.74
	δ^{28}	0.0946 (4.33%)	0.0996	1.0529	5.29
	C^*	0.797 (1.00%)	0.7916	0.9932	-0.68
TRX-2	k_{eff}	1.0	1.00297	1.0030	0.30
	ρ^{28}	0.837 (1.91%)	0.8282	0.9895	-1.05
	δ^{25}	0.0614 (1.30%)	0.0588	0.9577	-4.23
	δ^{28}	0.0693 (5.05%)	0.0704	1.0159	1.59
	C^*	0.647 (0.93%)	0.6378	0.9858	-1.42
BAPL-1	k_{eff}	1.0	1.00390	1.0039	0.39
	ρ^{28}	1.39 (0.72%)	1.3723	0.9873	-1.27
	δ^{25}	0.084 (2.38%)	0.0816	0.9714	-2.86
	δ^{28}	0.078 (5.13%)	0.0767	0.9833	-1.67
BAPL-2	k_{eff}	1.0	1.00359	1.0036	0.36
	ρ^{28}	1.12 (0.89%)	1.1404	1.0182	1.82
	δ^{25}	0.068 (1.47%)	0.0667	0.9809	-1.91
	δ^{28}	0.070 (5.71%)	0.0659	0.9414	-5.86
BAPL-3	k_{eff}	1.0	1.00427	1.0043	0.43
	ρ^{28}	0.906 (1.10%)	0.8945	0.9873	-1.27
	δ^{25}	0.052 (1.92%)	0.0513	0.9865	-1.35
	δ^{28}	0.057 (5.26%)	0.0540	0.9474	-5.26

표 2. 플루토늄 임계노심 CASMO-3 라이브러리 검증 계산결과

Experiments	E63LIB/A Library	E4LIB/JA Library	E4LIB/KA Library
ESADA- 1	0.99656	0.99835	0.99835
ESADA- 3	0.99228	0.99110	0.99155
ESADA- 4	1.00546	1.00369	1.00478
ESADA- 6	1.00667	1.00536	1.00659
ESADA- 7	1.00466	1.00496	1.00658
ESADA- 8	1.00344	1.00598	1.00606
ESADA- 9	1.00038	0.99987	1.00117
ESADA-10	1.00109	1.00417	1.00432
ESADA-11	0.99993	1.00056	1.00206
ESADA-12	1.00351	1.00235	1.00311
ESADA-13	1.00374	1.00280	1.00375
PNL-30	1.00193	1.00316	1.00327
PNL-31	0.99397	0.99694	0.99727
PNL-32	0.98302	0.98070	0.98158
PNL-33	1.00638	1.00911	1.01064
PNL-34	1.00291	1.00119	1.00231
PNL-35	1.00432	1.00690	1.00862
SAXTON-1	0.97807	0.98159	0.97792
SAXTON-2	0.99287	0.99452	0.99212
SAXTON-3	0.99801	1.00062	0.99825
SAXTON-4	0.98303	0.98281	0.98261
SAXTON-5	0.98683	0.98689	0.98696
SAXTON-6	0.99531	0.99685	0.99761

표 3a. WPPR PHASE 1 Benchmark A CASMO-3 라이브러리 검증 계산결과

Burnup (GWD/T)	E63LIB/A	E4LIB/JA	E4LIB/KA	IKE
0	1.12129	1.10086	1.12188	1.1308
10	1.06253	1.04093	1.06524	1.0688
33	0.99336	0.96634	0.99694	0.9949
42	0.96992	0.94102	0.97319	0.9705
50	0.95031	0.91986	0.95309	0.9507

표 3b. WPPR PHASE 1 Benchmark B CASMO-3 라이브러리 검증 계산결과

Burnup (GWD/T)	E63LIB/A	E4LIB/JA	E4LIB/KA	IKE
0	1.18451	1.18331	1.18134	1.1849
10	1.09543	1.09334	1.09420	1.0936
33	0.98856	0.98325	0.99102	0.9851
42	0.95217	0.94509	0.95490	0.9483
50	0.92172	0.91309	0.92437	0.9178