

$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 와 $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 감마선 핵종비를 이용한 PWR 사용후핵연료의 냉각시간 결정

박형중, 박대규, 박광준, 구대서, 엄성호, 민덕기, 노성기
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

PWR 사용후핵연료 내에 존재하는 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 및 $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 의 감마선 핵종비를 써서 각각 연소도를 결정하고, 그들의 차이가 최소가 되는 시간을 찾는 방법으로 사용후핵연료의 냉각시간을 결정하였다. $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 및 $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 의 핵종비로부터 연소도를 구하는 방법은 이들 핵종비에 대한 ORIGEN-S 코드 계산과 감마스캐닝 실험 결과를 비교하는 것이었다^[1]. 사용후핵연료의 냉각시간을 임의의 시간으로 가정하고 핵종비 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 을 써서 구한 연소도와 $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 를 써서 구한 연소도의 차이를 계산했으며, 이 차이는 실제 측정대상 핵연료의 냉각시간에서 최소가 될 것을 기대하였다. 감마선 방출 핵분열생성물인 ^{134}Cs 와 ^{154}Eu 는 비교적 긴 반감기를 갖고 있으면서도 또 이들의 반감기 차이가 약 6.4년이나 되므로 기존의 방법^[2]에 비해 넓은 범위의 냉각시간을 정확하게 측정할 수 있었다.

1. 서 론

사용후핵연료 속에 포함되어 있는 핵분열생성핵종들의 양은 그 핵연료의 초기 농축도, 조사이력, 연소도 및 냉각시간과 밀접하게 관련되어 있다. 따라서 다른 인자는 알려져 있고 냉각시간만을 모르는 경우 이들 핵분열 생성물의 양을 측정하므로써 사용후핵연료의 냉각시간을 구할 수 있다. 그러나 실제 경우 사용후핵연료의 연소도를 알고 있는 경우는

혼하지 않다. 따라서 연소도를 전혀 모르고 있는 경우에도 적용할 수 있는 방법을 개발할 필요가 있다.

지금까지 널리 사용되고 있는 방법^[2]은 $^{144}\text{Ce}/^{137}\text{Cs}$ 핵종비를 이용한 방법이었으나 약 10년된 사용후핵연료에서 방출되는 $^{144}\text{Ce}(2186)$ 과 $^{137}\text{Cs}(662)$ 의 감마선 세기의 비는 약 1:100,000 이므로 핵종비 $^{144}\text{Ce}/^{137}\text{Cs}$ 를 측정하는데는 어려움이 많고 측정 정밀도도 떨어지게 된다. 본 연구에서는 반감기가 긴 ^{134}Cs 와 ^{154}Eu 를 이용하여 비교적 냉각시간이 오래된 사용후핵연료의 냉각시간을 상대적으로 정확하게 측정할 수 있는 방법을 개발하였다. 특히, 사용후핵연료의 연소도를 모르는 상황에서도 이들 핵종비를 사용해서 냉각시간을 결정할 수 있었다.

2. 냉각시간 결정 방법

방사성 동위원소 핵종비 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 및 $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 는 연소도에는 거의 선형적으로 의존하는 반면 냉각시간에는 지수적으로 의존한다. 따라서 냉각시간이 t 라고 생각되는 사용후핵연료에 대해 이들 핵종비는 다음과 같이 주어지는 것으로 생각할 수 있다.

$$\begin{aligned} \text{핵종비 } ^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs} &= (P_1 + P_2 \cdot \text{연소도} + P_3 \cdot \text{연소도}^2) e^{-(d_{134} - d_{137})t} \dots\dots\dots \textcircled{1} \\ \text{핵종비 } ^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs} &= (Q_1 + Q_2 \cdot \text{연소도} + Q_3 \cdot \text{연소도}^2) e^{-(d_{154} - d_{137})t} \end{aligned}$$

여기서,

P_1, P_2, P_3 는 인출시점에 대해 ORIGEN-S코드^[3,4]로 계산한 핵종비 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 를 연소도에 회귀분석하여 얻은 계수이고,

Q_1, Q_2, Q_3 는 인출시점에 대해 ORIGEN-S코드로 계산한 핵종비 $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 를 연소도에 회귀분석하여 얻은 계수이며,

$$d_{134} = \frac{\ln 2}{\tau_{^{134}\text{Cs}}}, \quad d_{137} = \frac{\ln 2}{\tau_{^{137}\text{Cs}}}, \quad d_{154} = \frac{\ln 2}{\tau_{^{154}\text{Eu}}} \text{ 는 각각 } ^{134}\text{Cs}, ^{137}\text{Cs}, ^{154}\text{Eu} \text{의 붕괴상수이다.}$$

따라서 만약 사용후핵연료에 대해 핵종비 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 와 $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 를 감마선 스펙트럼분석등의 방법으로 측정할 수 있다면 측정된 핵종비를 만족하는 연소도와 냉각시간의 관계는 그림 1로 주어지게 된다. 그림에 나타난 이들 두 곡선의 차이는 순전히

$^{134}\text{Cs}, ^{154}\text{Eu}$ 의 붕괴상수(반감기) 차이에서 비롯되는 것이다. 그러므로 ①식에서 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 를 사용해서 얻은 연소도와 $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 를 사용해서 얻은 연소도의 차이가 최소

로 하는 시간을 사용후핵연료의 냉각시간으로 결정할 수 있다. 그 과정은 다음과 같다.

- 1) 방사성동위원소 핵종비 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 및 $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 를 감마스캐닝 방법으로 측정한다.
- 2) 핵연료의 냉각시간이 t 라 임의로 가정한다.
- 3) 냉각시간이 t 라는 가정하에서, 측정된 핵종비 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 및 $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 를 써서 ① 식에서 연소도를 각각 구한다.
- 4) 핵종비 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 를 써서 구한 연소도와 $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 를 써서 구한 연소도는 실제 냉각시간 $t = T$ 에서 서로 근사한 값을 가질 것이다. 이들 연소도의 차이가 최소가 되는 시간을 사용후핵연료의 냉각시간으로 결정한다.

이 방법은 사용후핵연료의 연소도를 미리 알 필요가 없고, 측정에 사용되는 ^{134}Cs 와 ^{154}Eu 의 감마선 에너지가 $^{137}\text{Cs}(662)$ 와 가까우며, ^{134}Cs , ^{137}Cs 및 ^{154}Eu , ^{137}Cs 의 감마선 세기 비가 냉각시간 10년 전후의 사용후핵연료에 대해 약 1:10정도로 기존의 방법보다 실험이 수월하며 적은 계통 오차를 갖는다. 한편, 이 방법은 핵종비가 냉각시간에 지수적으로 의존하고, ^{154}Eu 의 반감기가 약 8.5년인데 반해 ^{134}Cs 의 반감기는 약 2.06년으로 비교적 큰 차이가 있으므로 냉각시간에 민감한(sensitive) 방법이다. 즉, 실제 냉각시간 T 에서 $\Delta T > 0$ 만큼 벗어난 시간 $t = T + \Delta T$ 를 냉각시간으로 가정하는 경우 측정된 핵종비 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 와 일치하는 결과를 얻기 위해서는 매우 높은 연소도를 필요로 하는 반면 핵종비 $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 는 비교적 낮은 연소도로도 만족될 수 있다. 그리고 이들 연소도의 차이는 $|\Delta T|$ 가 클수록 커진다.

3. 실험

연소도 측정 실험은 두 번에 걸쳐 행해졌다. 실험에 대한 개요는 표 1에 나타내었다. 조사재시험시설(IMEF) 핫셀 실험에 사용된 시편은 고리 1호기 사용후핵연료(고유번호: J14E11)이었다. 이 연료봉의 추정 평균연소도는 약 39 GWd/MtU 이며 1989년 1월에 원자로에서 인출(discharge)되어 측정시점까지의 냉각기간은 약 8.5년이었다. 이 핵연료 전체를 10 cm 간격으로 잘라 이들 36개의 절편을 빈 CANDU형 연료봉 튜브에 넣어 밀봉하였고 각각의 시편에 대해 고유번호를 부여하였는데, 각각은 A1 ~ A9, B1 ~ B9, C1 ~ C9, D1 ~ D9으로 하였다. 이 중에서 본 실험에서 측정에 쓰인 핵연료절편은 연료하단에

서부터 12개인 A1 ~ A9, B1 ~ B3 이었다. 고리 1호기 연료봉 절편 실험을 보완하기 위해 비교적 냉각시간이 짧고 초기농축도가 높은 고리 2호기 사용후핵연료(고유번호: J44M5)에 대한 냉각시간 결정 실험을 조사후시험시설(PIEF) 핫셀에서 수행하였다. 이 연료봉의 추정 평균연소도는 약 36 GWd/MtU로 1992년5월29일 인출되어 감마스캐닝실험 시점까지의 냉각시간은 약 5.3년이었다.

표 1. 연소도 측정 실험 개요

실험 대상	실험장소	ID 연소주기	초기우라늄농축도 발전소 공표연소도 냉각시간	실험 기간
고리1호기 연료봉 절편	IMEF 핫셀	J14E11 7/8/9	3.2wt% 39 GWd/MtU 8.5년	1997년 6월-7월
고리2호기 연료봉	PIEF 핫셀	J44M5 7/8	3.5wt% 36 GWd/MtU 5.3년	1997년 9월-10월

IMEF 핫셀 실험에서 감마선 스펙트럼의 측정은 각 펠렛 중앙부위에 대하여 4,800초씩 (200초 × 24개 지점) 하였다. 실제로는 각 펠렛의 측정방향에 따른 변화를 알기 위하여 중앙위치에서 15도씩 회전하면서 각 방향마다 200초씩 측정(각 방향에 따른 감마선세기의 차이는 2%이내)하여 각 스펙트럼에서 얻은 피이크 면적을 합하였다. PIEF 핫셀 실험에서는 핵연료봉의 밑에서부터 2 cm씩 이동하면서 30분씩 총 65개 지점에서 스펙트럼을 얻었다^[1,5]

4. 실험 결과 및 결론

그림 2와 3은 [1]에서 측정한 연소도를 보여준다. 그림 2는 J14E11 연료봉 총 72개 지점에 대한 연소도를 나타내며, 그림 3은 J44M5 연료봉 총 65개 지점에 대한 연소도를 나타낸다. 각 측정 위치에서 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 와 $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 를 이용해서 결정한 연소도의 평균 차이를 다음과 같이 정의하였다.

$$F \equiv \left[\sum_{\text{측정위치 } i=1}^N \frac{|BU_i(\text{Cs}) - BU_i(\text{Eu})|}{\overline{BU}_i} \right] / N$$

여기서, $BU_i(\text{Cs})$ 는 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 를 써서 측정한 연소도이고, $BU_i(\text{Eu})$ 는 $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 를 써서 측정한 연소도이며, $\overline{BU}_i = \frac{BU_i(\text{Cs}) + BU_i(\text{Eu})}{2}$ 이다. 그림 4와 5는 임의의 냉각 시간 t 에서 F 값과 평균 연소도를 보여준다. 그림에서 F 값이 최소가 되는 점의 시간을 사용후핵연료의 냉각시간으로 정해서 다음 결과를 얻었다.

J14E11 연료봉의 냉각시간 : 8.3 ± 0.2 년

J44M5 연료봉의 냉각시간 : 5.0 ± 0.2 년

이들 결과는 각각 발전소 공표값 8.45년과 5.3년에 잘 일치한다.

참고문헌

1. 박형종의, "감마선 동위원소 핵종비 방법에 의한 PWR 사용후핵연료의 연소도 측정", 한국원자력학회 '98 춘계학술발표회 발표논문 원고 (1998).
2. 이영길, 엄성호, 노성기, "방사능비 $^{144}\text{Ce}/^{137}\text{Cs}$ 검출에 의한 사용후핵연료 냉각기간 결정," 한국원자력학회지, Vol.25, No.2, p.237, 한국원자력연구소 (1993).
3. O.W.Hermann, R.M.Westfall, "ORIGEN-S: Scale System Module to Calculate Fuel Depletion, Actinide Transmutation, Fission Product Build-up and Decay, and Associated Radiation Source Terms," NUREG/CR/-0200 Rev 5 volume 2, section F7, ORNL, USA (1995).
4. M.D. DeHart, O.W. Hermann, and C.V. Parks, "Validation of a Method for Prediction of Isotopic Concentrations in Burnup Credit Applications", *The 5th International Conference on Nuclear Criticality Safety*, New Mexico, USA (1994).
5. 박대규의, "감마스캐닝에 의한 사용후PWR핵연료의 핵종비 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 및 $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 측정", KAERI/TR-925/97, 한국원자력연구소 (1997).

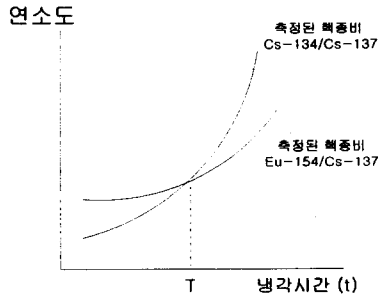


그림 1. 추정된 핵종비를 만족하는 연소도와 냉각시간

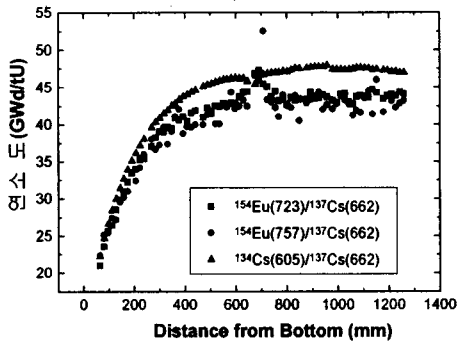


그림 2. J14E11의 연소도

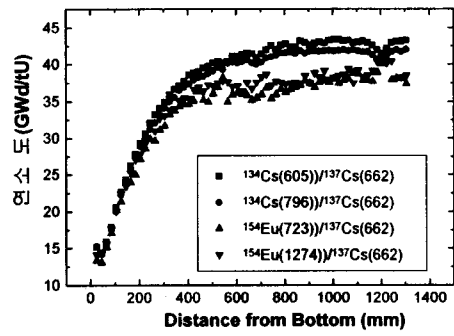


그림 3. J44M5의 연소도

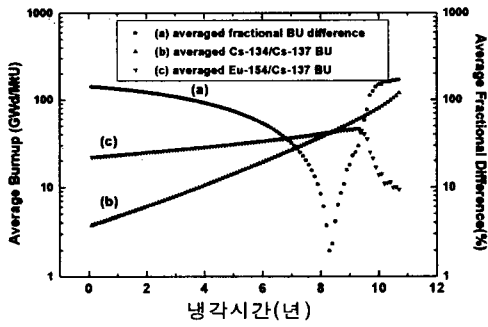


그림 4. J14E11의 냉각시간

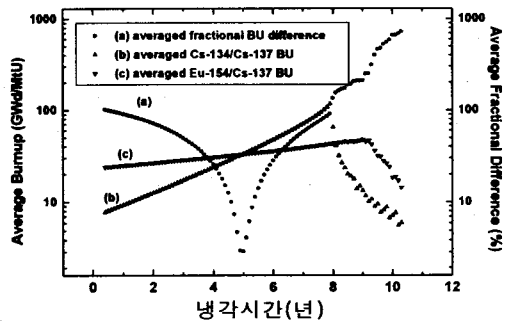


그림 5. J44M5의 냉각시간