`99 춘계학술발표회 논문집

한국원자력학회

사용후핵연료 구성핵종의 보수적인 핵종량 예측을 위한 보정인자 결정

Determination of Correction Factors for Conservative Prediction of Spent Fuel Composition

신희성, 배강목, 노성기, 구대서, 김익수

한국원자력연구소

요 약

SCALE4.4의 SAS2H (Shielding Analysis Sequence No.2) 모듈과 27 군, 44 군 및 238 군 핵단면적 라이브러리를 각각 사용하여 54개 사용후핵연료 실험자료에 대해 연소계산을 수행하였다. 핵종량 계산값에 대한 실험값의 비율을 구하고 이를 근거로 27 군, 44 군 및 238 군의 핵단면적 라이브러리를 각각 사용한 경우에 대한 38개 핵종의 핵종량 보정인자를 결정하였다. 238 군을 사용한 경우에는 Sm-152, Eu-153, Pu-238, Pu-239, Pu-241 및 Am-241를 제외한 모든 핵종의 보정인자가 기존의 결과보다 1.0에 더 접근하는 것으로 나타났다.

ABSTRACT

Depletion calculations have been performed for 54 PWR spent fuel samples using SAS2H (Shielding Analysis Sequence No.2) module of SCALE4.4 with 27 group, 44 group and 238 group cross section libraries, respectively. Therefrom, ratios of measured to calculated isotopic concentrations have been obtained and used to calculate the correction factors of 38 nuclides for using 27 group, 44 group and 238 group libraries, respectively.

It is revealed that the correction factors of all nuclides but Sm-152, Eu-153, Pu-238, Pu-239, Pu-241 and Am-241 in the case of the 238 group library are closer to 1.0

than the existing values.

1. 서론

사용후핵연료에 포함된 핵종의 양을 정확하게 예측하는 것은 연소도 고려 핵임계 안전해석에 매우 중요하다. Hermann 등[1]은 1995 년에 19 개 사용후핵연료 조성비에 대한 실험자료를 기준으로 SAS2H (Shielding Analysis Sequence No.2)의 계산오차를 분석하여 보수적인 관점에서 핵임계도 분석용 보정인자를 결정한 바 있다. 이어 1996 년에 DeHart 등[2]이 이를 확장하여 38 개 실험자료를 기준으로 39 개 핵종에 대한 보정인자를 결정한 바 있다. 또한 미국 DOE 에서는 1997 년에 54 개 실험자료를 바탕으로 10 개 악티나이드 핵종에 대한 계산오차를 분석하여 핵종별 보정인자를 결정한 바 있다[3]. 그러나 이들은 SCALE4.2 와 일부의 실험자료를 활용하였거나 일부 핵종만을 다루었다. 따라서 최근에 공개된 SCALE4.4[4]를 사용하여 전체 실험자료를 기준으로 가능한 많은 핵종에 대한 보정인자를 결정할 필요가 있다.

본 연구에서는 유효한 실험자료가 주어진 54 개 PWR 사용후핵연료를 대상으로 SCALE4.4 의 SAS2H 모듈[4]과 27 군, 44 군 및 238 군 핵단면적 라이브러리를 사용하여 연소계산을 각각 수행하고, 계산결과와 실험값을 비교하여 핵종량 보정인자를 결정하였다.

2. SAS2H 모듈의 특성

SAS2H 는 Fig.1 에 제시한 바와 같이 연소계산 코드인 ORIGEN-S 와 이 코드의 핵자료 생산 모듈인 BONAMI-NITWAL_II-XSDRNPM-COUPLE 코드[4]로 구성되어 있다. 핵자료 생산모듈에서는 핵연료 부분과 제어봉 부분에 대한 셀계산을 별도로 수행하고 각각 생산된 핵단면적을 가중 평균하여 1 군 핵단면적을 생산한다.

ORIGEN-S 코드에 사용되는 핵종은 1000 여 종이나 되기 때문에 이들 핵종 모두의 핵단면적을 생산하는 것은 무리다. Fig. 1에서 볼 수 있듯이 전체 핵종에 대한 LWR 형 핵단면적을 수록한 PRLIMLWR 라이브러리[4]를 기본 라이브러리로 사용한다. 사용자가 선택한 핵종의 핵단면적만을 Fig. 1 의 핵단면적 생산모듈에 의해서 생산된다. 이렇게 생산된 핵단면적 자료를 COUPLE 코드[4]로 처리하여 PRLIMLWR 의 핵단면적 값을 개선(update))하므로써 새로운 1 군 핵단면적 라이브러리를 생산한다. ORIGEN-S 코드는 새로 생생된 핵단면적 라이브러리를 사용하여 매 연소사이클마다 연소된 핵종량을 생산하여 다음 사이클의 핵자료 생산에 반영되도록 한다.

3. 사용후핵연료 구성핵종의 핵종량 실험자료

Table 1에 제시한 바와 같이 7 개의 원자로에서 연소된 54 개 사용후핵연료를 SAS2H 모듈의 계산오차 분석용 실험자료로 선정하였다[1,2,3]. 사용후핵연료의 초기농축도는 2.453 wt%에서 3.897 wt%까지 걸쳐 있고, 연소도는 6.92 GWd/tU 에서 46.6 GWd/tU 범위의 값을 갖는다. 냉각기간은 10 일에서 3936 일 사이의 값을 가지며, 핵연료봉의 격자배열은 14x14, 15x15 및 18x18 이다.

4. 핵종량 계산값에 대한 실험값의 비율 분석 및 보정인자 결정

가. 핵종량 비율분석

38 개 핵종에 대해서 SAS2H 모듈과 27 군, 44 군 및 238 군 라이브러리를 각각 써서 사용후핵연료 구성핵종의 핵종량 계산값에 대한 실험값의 비율(이하 비율이라 함)을 구하였다. 사용후핵연료 별로 U-235 와 Pu-239 의 비율을 참고문헌[1,2,3]에서 제시한 값과 함께 각각 Fig. 2 와 3 에 나타내었다. Fig. 2 와 3 에서 볼 수 있듯이 27 군과 44 군을 사용한 경우의 비율은 기존의 결과와 거의 동일한 값을 보였다. 238 군 경우, 그 비율은 다른 경우에 비해 1.0 에 더 접근하는 경향을 보였다. 이런 경향은 비핵분열핵종과 핵분열생성물의 경우에는 보다 분명하게 나타났다.

Fig. 2 와 3 에서 볼 수 있듯이 사용후핵연료에 따라 비율의 변화가 심하지만 사용된 핵자료 라이브러리 별로 일정한 순서를 유지한다. 즉, 비율의 크기 순서는 기존 결과, 27 군, 44 군 및 238 군 결과 순이며, 일부 예외는 있지만 전체 사용후핵연료에서 이 순서를 유지한다. 비핵분열핵종이나 핵분열생성물의 경우에는 거의 예외없이 핵종별로 일정한 순서를 유지한다. 이것은 1 군 핵단면적 생산에서 가중함수로 사용하는 노심의 중성자 에너지 스펙트럼이 거의 동일하다는 것을 의미한다. 또한 핵종량 계산과 처리 과정에 에러가 없음을 입증한다고 볼 수 있다.

나. 평균비율 및 표준편차 비교분석

앞에서 얻은 비율의 평균값(이하 평균비율이라함)과 표준편차를 결정하여 기존의 결과와 비교하였다. Fig. 4 에서는 27 군을 사용하여 얻은 평균비율과 표준편차를 ORNL 의 27 군 결과[2]와 비교하였고, Fig. 5 에서는 44 군과 238 군 결과에서 얻은 평균비율과 표준편차를 ORNL 44 군 결과[2]와 비교하였다. 막대그래프 위에 표시된 에러바(error bar)는 표준편차다. 평균비율이 1.0 에 가까워지는 것은 계산값이 실험값에 접근함을 의미한다. 따라서 평균비율이 1.0 에 더 접근하면 상대적으로 양호한 결과로 볼 수 있다. 표준편차는 물론 작을수록 양호한 결과다. 평균값이 1.0 에 접근하는 정도를 파악하기 위해서 1.0 에 대한 평균값 차이의 절대값 (이하 편차라 함)을 활용하였다. 표준편차의 경우에는 ORNL 의 결과에 대한 표준편차의 상대오차를 활용하였다. 본 연구의 편차가 ORNL 의 편차보다 5 % 이상 크거나 표준편차의 상대오차가 5 % 이상 큰 경우에는 상대적으로 불량한 것으로

간주하였다.

본 연구의 27 군의 경우에는 불량한 결과를 나타낸 핵종은 Sm-149, Sm-152, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Am-241 및 Am242m 이다. Sm-149 의 편차는 각각 8.3 %로 5 % 보다 크게 나타났지만, 나머지 7 개 핵종의 편차는 2 % 이하이고 표준편차의 상대오차가 큰 차이를 보였다. 이들 핵종을 제외한 나머지 핵종은 ORNL 의 결과와 비슷하거나 양호함으로 전체적으로 볼 때, 본 연구의 27 군 결과는 ORNL 27 군의 결과에 비해 개선된 것으로 볼 수 있다.

본 연구의 44 군의 경우에는 Sr-90, Sm-149, Sm-152, Eu-153, U-235, Pu-238, Pu-239, Pu-241 및 Am-241 에서 불량한 결과를 보였다. 이들 핵종의 편차는 대부분 2 % 정도이기 때문에 평균값의 차이는 작지만, 표준편차의 상대오차가 약간 큰 차이를 보였다. 이들 핵종을 제외한 나머지 핵종은 ORNL 의 결과와 비슷하거나 양호함으로 본 연구의 44 군 결과는 ORNL 44 군의 결과에 비해 약간 개선되었다 볼 수 있다. 본 연구의 238 군의 결과를 같은 방법은 비교해 보면 Sm-149, Sm-152, Eu-153, Pu-238, Pu-239, Pu-241 및 Am-241 의 결과가 불량한 것으로 나타났다. 그러나 Sm-149 와 Pu-238 을 제외한 나머지 핵종의 편차가 1 % 미만이다. 종합적으로 볼 때, 238 군의 결과는 ORNL 44 군과 본 연구의 44 군 결과보다 더 양호한 것으로 볼 수 있다.

다. 핵종량 보정인자 결정

평균 비율이 $\overline{X}$ 이고 표준편차가 s 인 경우에 새로운 비율(새로운 계산값에 대한 참값의 비율)이 95 % 신뢰도 및 95 % 존재 확률을 갖는 범위는 다음과 같은 식으로 표현된다[5,6].

$$\overline{X} - T_{95/95} \cdot s \le \frac{E'}{C'} \le \overline{X} + T_{95/95} \cdot s \qquad (1)$$

식(1)의 $T_{95/95}$는 95 % 신뢰도 및 95 % 확률을 갖는 공차한계계수(Tolerance Limit Factor)이며 데이터수에 의존하는 계수다[7]. C'과 E'는 각각 새로운 계산값과 참값을 나타낸다. 식(1)에서 참값의 상한값은 계산값(C')에 부등호 우측의 값을 곱한 값이고, 하한값은 계산값(C')에 부등호 죄측의 값을 곱한 값이다. 보수적인 핵임계도 계산을 수행하기 위해서는 핵분열물질의 경우에는 상한값을 취하고 비핵분열물질인 경우에는 하한값을 취하게 된다. 즉 핵분열물질과 비핵분열물질의 보정인자를 다음과 같이 결정한다.

$$f_{\text{fissile}} = \overline{x} + T_{95/95} \cdot s \qquad (2)$$

$$f_{\text{non-fissile}} = \overline{x} - T_{95/95} \cdot s \qquad (3)$$

이 보정인자를 계산값에 곱해 주면 95 %/95 % 신뢰도 및 확률을 갖는 보수적인 핵종량을 얻을 수 있다. 식(2)와 (3)을 이용하여 구한 38 개 핵종의 핵종량 보정인자 값을 Table 2에 제시하였다.

Table 2 에서 제시된 238 군 라이브러리 경우의 보정인자를 ORNL 44 군 경우의 보정인자와 비교해 보면, 평균비율의 비교에서 불량으로 판정된 Sm-152, Eu-153, Pu-238, Pu-239, Pu-241 및 Am-241 제외한 모든 핵종의 보정인자가 1.0 에 더 근접하는 것으로 나타났다.

SAS2H 로 계산한 사용후핵연료 구성핵종의 핵종량 계산값에 Table 2의 보정인자를 곱해 주면 95 % 신뢰도 및 확률을 갖는 핵종량을 얻을 수 있다.

5. 결론

SCALE4.4 의 SAS2H 모듈과 27 군, 44 군 및 238 군 핵단면적 라이브러리를 사용하여 38 개 핵종의 핵종량 보정인자를 결정하므로써 사용후핵연료 구성핵종의 핵종량의 보수적인 예측이 가능하도록 했다. 앞으로 이들 보정인자를 활용하여 연소도를 고려한 핵임계도 계산을 수행하면 좀더 정량적인 비교값을 얻을 수 있을 것이다. 또한 기존의 결과와 크게 차이가 난 핵종에 대한 정밀한 원인 분석이 뒤따라야 할 것이다.

감사의 글

본 결과는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 SF 차세대관리공정개발과제에서 수행한 것으로 연구비 지원에 대해 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. O. W. Hermann, S. M. Bowman, M. C. Brady, and C. V. Parks, "Validation of the Scale System for PWR Spent Fuel Isotopic Composition Analyses," ORNL/TM-12667, Oak Ridge National Laboratory (1995).
2. M. D. Dehart and O. W. Hermann, "An Extension of the Validation of SCALE (SAS2H) Isotopic Predictions for PWR Spent Fuel," ORNL/TM-13317 (1996).
3. Meraj Rahimi, "Isotopic and Criticality Validation for PWR Actinide-only Burnup Credit," DOE/RW-0497, U.S. Department of Energy (1997).
4. S. G. Ro, "Development of Advanced Spent Fuel Management Process : Criticality Safety Analysis fo Integrated Mockup and Metallized Spent Fuel Storage," KAERI/TR-1250/99 (1999).
5. S. G. Ro, "Development of Advanced Spent Fuel Management Process," KAERI/RR-166/96, KAERI (1996).
6. R.E. Walpole and R.H. Myers, Probability and Statistics for Engineers and Scientists, 5th ed., Prentice Hall, New York (1993).
7. Robert E. Odeh and D. B. Owen, Table for Normal Tolerance Limits, Sampling Plans, and Screening, Marcel Dekker, Inc., New York (1980).

Table 1. Operating Parameters for 54 Spent PWR Fuel Samples

Reactor	Assembly ID	Calculation ID	Enrichment (U-235 wt%)	Burnup (GWd /tU)	Cooling Time (d)	Pellet Density (g/cm^3)	Lattice Array	Rod No.	Active Fuel Length (cm)
Yankee rowe	E6-C-f6	YK1	3.400	15.95	281.5	10.18	18×18	305	230.05
	E6-C-f6	YK2	3.400	30.39	281.5	10.18	18×18	305	230.05
	E6-C-f6	YK3	3.400	31.33	281.5	10.18	18×18	305	230.05
	E6-C-f6	YK4	3.400	20.19	281.5	10.18	18×18	305	230.05
	E6-SE-c2	YK5	3.400	32.03	281.5	10.18	18×18	305	230.05
	E6-SE-c2	YK6	3.400	31.41	281.5	10.18	18×18	305	230.05
	E6-SE-e4	YK7	3.400	35.97	281.5	10.18	18×18	305	230.05
	E6-SE-e4	YK8	3.400	35.26	281.5	10.18	18×18	305	230.05
Mihama-3	86b02	MI1	3.208	8.30	1825	9.996	15×15	204	365.76
	86b03	MI2	3.208	6.92	1825	9.996	15×15	204	365.76
	86g05	MI3	3.208	15.36	1825	9.996	15×15	204	365.76
	86g03	MI4	3.203	21.29	1825	9.996	15×15	204	365.76
	86c03	MI6	3.203	29.50	1825	9.996	15×15	204	365.76
	87c04	MI7	3.210	32.20	1825	9.996	15×15	204	365.76
	87c07	MI8	3.210	33.71	1825	9.996	15×15	204	365.76
	87c08	MI9	3.210	34.32	1825	9.996	15×15	204	365.76
Trino Vercellese	509-104-M11-7	TR1	3.897	12.04	10	10.035	15×15	221	264.1
	509-032-E11-4	TR2	3.130	15.38	10	10.035	15×15	221	264.1
	509-032-E11-7	TR3	3.130	15.90	10	10.035	15×15	221	264.1
	509-032-E11-9	TR4	3.130	11.53	10	10.035	15×15	221	264.1
	509-069-E11-1	TR5	3.130	12.86	10	10.035	15×15	221	264.1
	509-069-E11-2	TR6	3.130	20.60	10	10.035	15×15	221	264.1
	509-069-E11-4	TR7	3.130	23.72	10	10.035	15×15	221	264.1
	509-069-E11-7	TR8	3.130	24.30	10	10.035	15×15	221	264.1
	509-069-E5-4	TR9	3.130	23.87	10	10.035	15×15	221	264.1
	509-069-E5-7	TR10	3.130	24.55	10	10.035	15×15	221	264.1
	509-069-L11-4	TR11	3.130	23.93	10	10.035	15×15	221	264.1
	509-069-L11-7	TR12	3.130	24.36	10	10.035	15×15	221	264.1
	509-069-L5-4	TR13	3.130	24.33	10	10.035	15×15	221	264.1
	509-069-L5-7	TR14	3.130	24.31	10	10.035	15×15	221	264.1
Calvert Cliffs Units 1	D047-MKP109	CA1	3.038	27.35	1870	10.036	14×14	176	347.22
	D047-MKP109	CA2	3.038	37.12	1870	10.036	14×14	176	347.22
	D047-MKP109	CA3	3.038	44.34	1870	10.036	14×14	176	347.22
	D101-MLA098	CA4	2.720	18.68	2374	10.036	14×14	176	347.22
	D101-MLA098	CA5	2.720	26.62	2374	10.036	14×14	176	347.22
	D101-MLA098	CA6	2.720	33.17	2374	10.036	14×14	176	347.22
	BT03-NBD107	CA7	2.453	31.40	2447	10.036	14×14	160	347.22
	BT03-NBD107	CA8	2.453	37.27	2447	10.036	14×14	160	347.22
	BT03-NBD107	CA9	2.453	46.46	2447	10.036	14×14	160	347.22
Turkey point 3	D01-G9	TK1	2.556	30.72	927	10.235	15×15	204	365.8
	D01-G10	TK2	2.556	30.51	927	10.235	15×15	204	365.8
	D01-H9	TK3	2.556	31.56	927	10.235	15×15	204	365.8
	D04-G9	TK4	2.556	31.26	927	10.235	15×15	204	365.8
	D04-G10	TK5	2.556	31.31	927	10.235	15×15	204	365.8
H. B. Robinson	N-9B-S	RO1	2.560	16.02	3936	9.944	15×15	204	365.8
	N-9B-N	RO2	2.560	23.81	3936	9.944	15×15	204	365.8
	N-9C-J	RO3	2.560	28.47	3631	9.944	15×15	204	365.8
	N-9C-D	RO4	2.560	31.66	3631	9.944	15×15	204	365.8
Obrigheim	170-94	OB1	3.130	25.93	10	9.742	14×14	180	295.6
	172-92	OB2	3.130	26.54	10	9.742	14×14	180	295.6
	176-91	OB3	3.130	27.99	10	9.742	14×14	180	295.6

	168-86	0B4	3.130	28.40	10	9.742	14×14	180	295.6
	171-89	0B5	3.130	29.04	10	9.742	14×14	180	295.6
	176-90	OB6	3.130	29.52	10	9.742	14×14	180	295.6

Table 2. Conservative Correction Factors for 38 Nuclides

Nuclide	ORNL(SCALE4.2, 38 Samples)		This Study (SCALE4.4, 54 Samples)		
	27 Group	44 Group	27 Group	44 Group	238 Group
Se-79	0.621	0.621	0.622	0.620	0.620
Sr-90	0.909	0.910	0.939	0.937	0.941
Tc-99	0.594	0.590	0.593	0.592	0.582
Ru-106	0.730	0.696	0.716	0.720	0.714
Sn-126	0.138	0.142	0.141	0.140	0.139
I-129	0.702	0.701	0.684	0.716	0.684
Cs-133	0.928	0.907	0.940	0.918	0.903
Cs-134	0.905	0.940	0.901	0.935	0.963
Cs-135	0.820	0.859	0.851	0.902	0.888
Cs-137	0.957	0.958	0.958	0.958	0.959
Ce-144	0.877	0.871	0.867	0.867	0.877
Nd-143	0.930	0.962	0.959	0.972	0.958
Nd-144	0.957	0.946	0.987	0.969	0.987
Nd-145	0.981	0.973	0.985	0.977	0.981
Nd-146	0.953	0.939	0.988	0.980	0.987
Nd-148	0.954	0.954	0.969	0.970	0.969
Nd-150	0.825	0.823	0.899	0.899	0.899
Sm-148	0.938	0.967	0.962	0.986	1.025
Sm-149	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Sm-150	0.625	0.619	0.643	0.640	0.644
Sm-152	0.775	0.755	0.557	0.562	0.735
Eu-153	0.601	0.641	0.665	0.566	0.570
Eu-154	0.669	1.061	0.667	1.043	0.999
U-234	0.622	0.635	0.738	0.754	0.756
U-235	1.101	1.085	1.109	1.108	1.073
U-236	0.909	0.910	0.913	0.914	0.916
U-238	0.992	0.992	0.990	0.990	0.990
Np-237	0.622	0.697	0.643	0.717	0.749
Pu-238	0.814	0.856	0.853	0.906	0.918
Pu-239	1.048	1.076	1.086	1.113	1.077
Pu-240	1.009	0.945	1.013	0.967	0.949
Pu-241	1.014	1.087	1.085	1.156	1.118
Pu-242	0.962	0.848	0.969	0.882	0.876
Am-241	0.583	0.609	0.510	0.548	0.556
Am-242m	0.405	0.462	0.459	0.528	0.505
Am-243	0.883	0.804	0.868	0.799	0.795
Cm-242	1.086	1.168	1.105	1.240	1.215
Cm-244	1.192	0.973	1.179	0.981	0.917

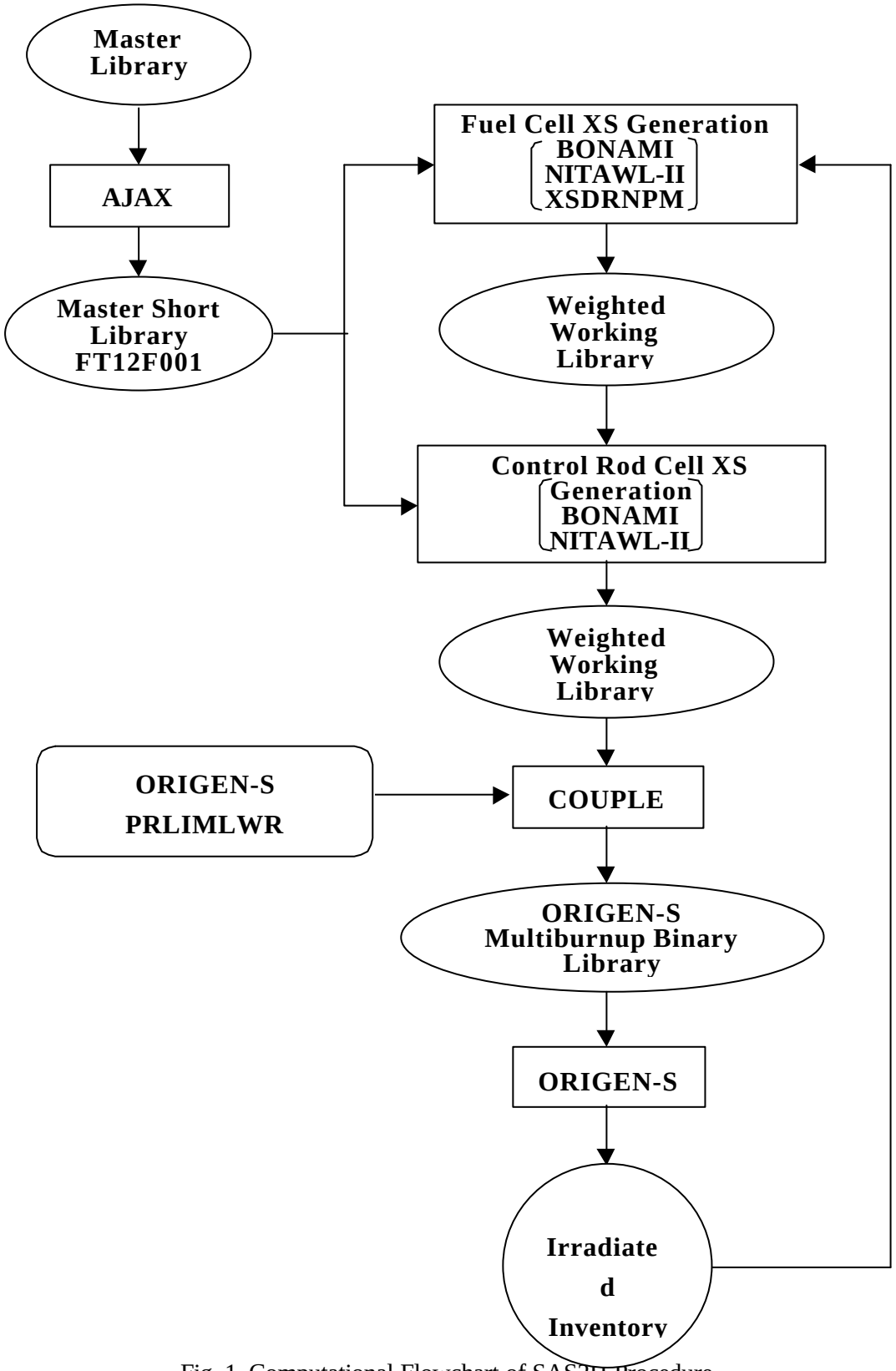

Fig. 1. Computational Flowchart of SAS2H Procedure.

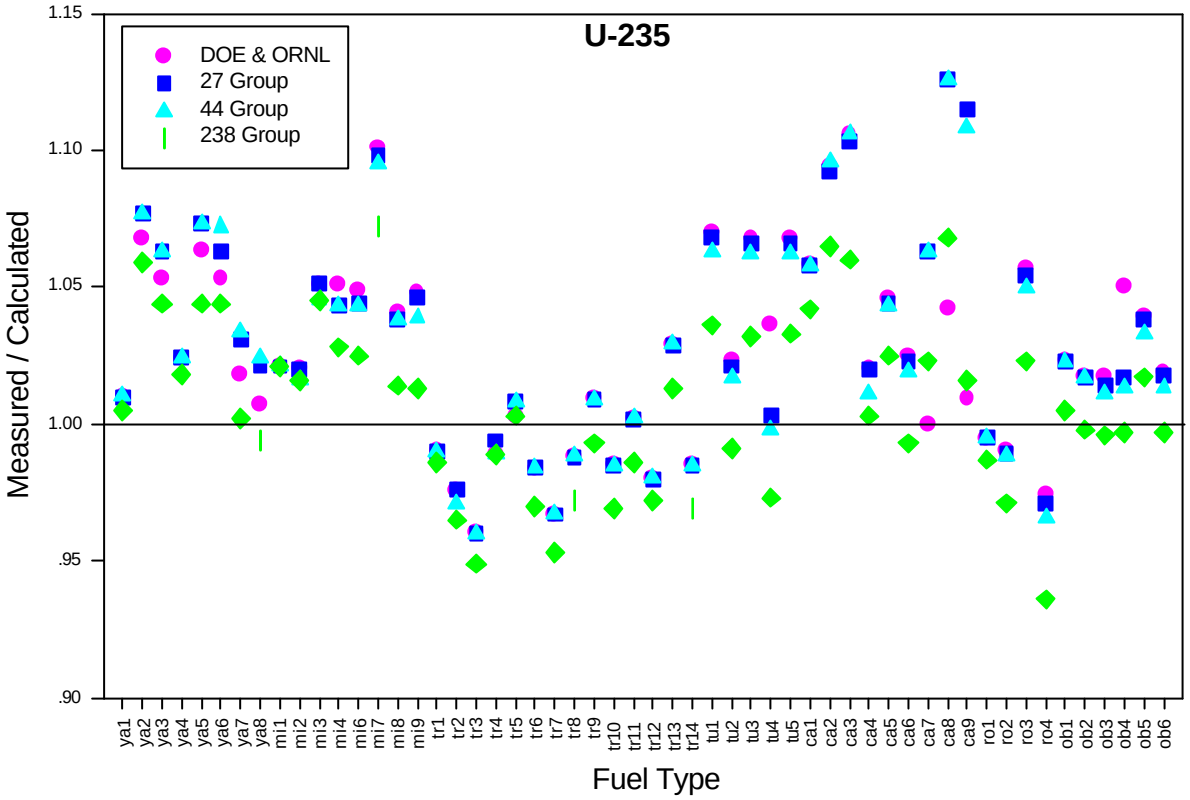

Fig. 2. Measured to Calculated Ratio of U-235 Concentration for 54 Spent PWR Fuel Samples.

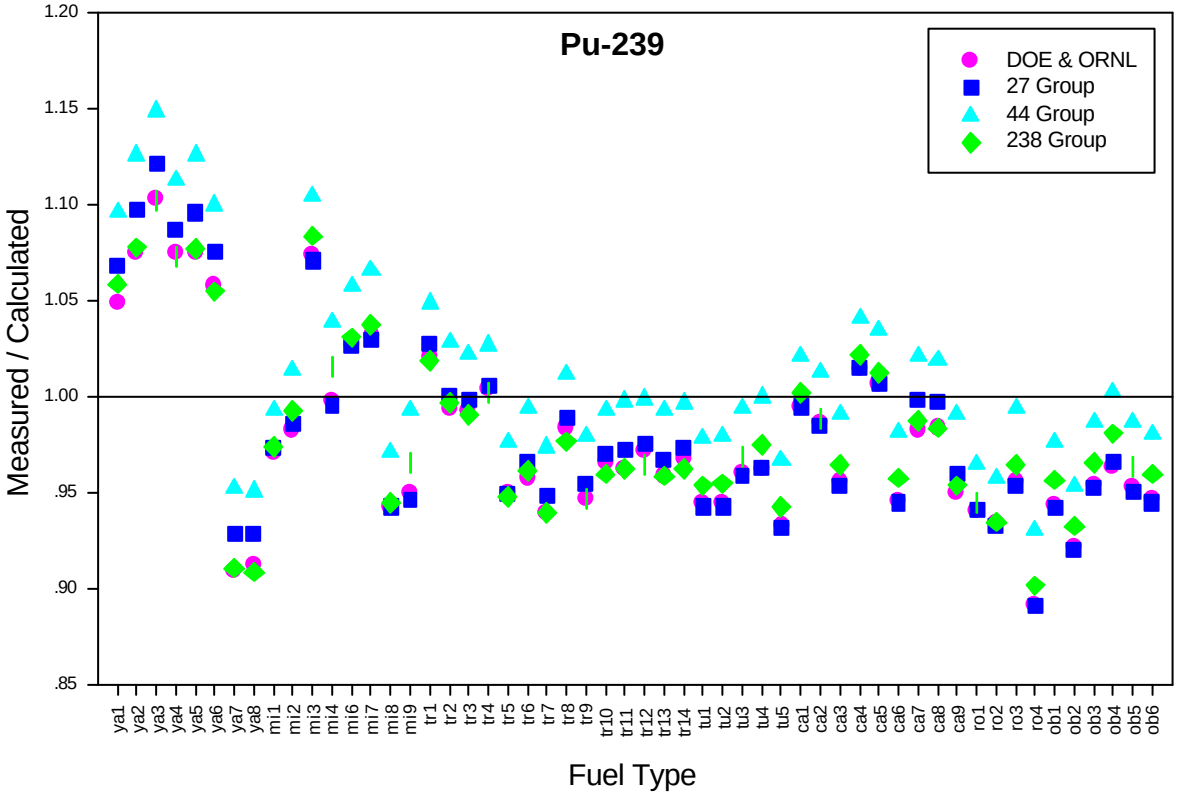

Fig. 3. Measured to calculated Ratio of Pu-239 Concentration for 54 Spent PWR Fuel Samples.

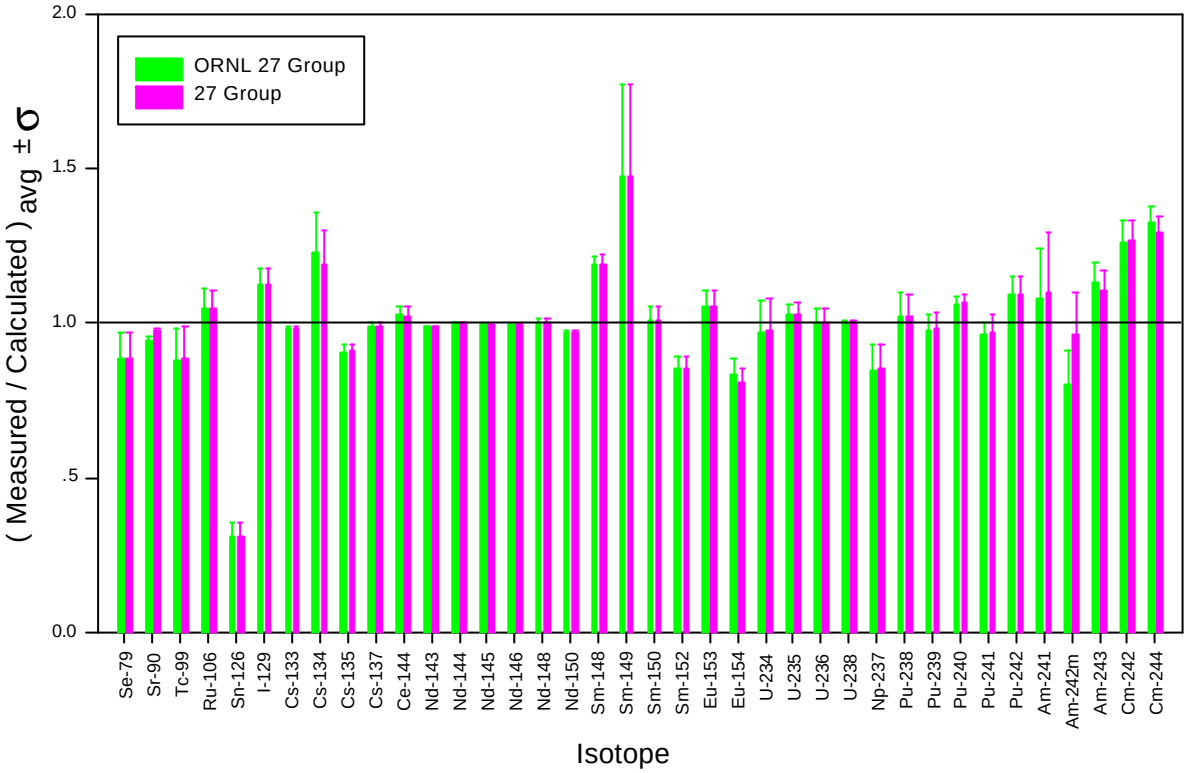

Fig. 4. Comparison of Average Ratios(Measured/Calculated) in the Case of 27 Energy Group.

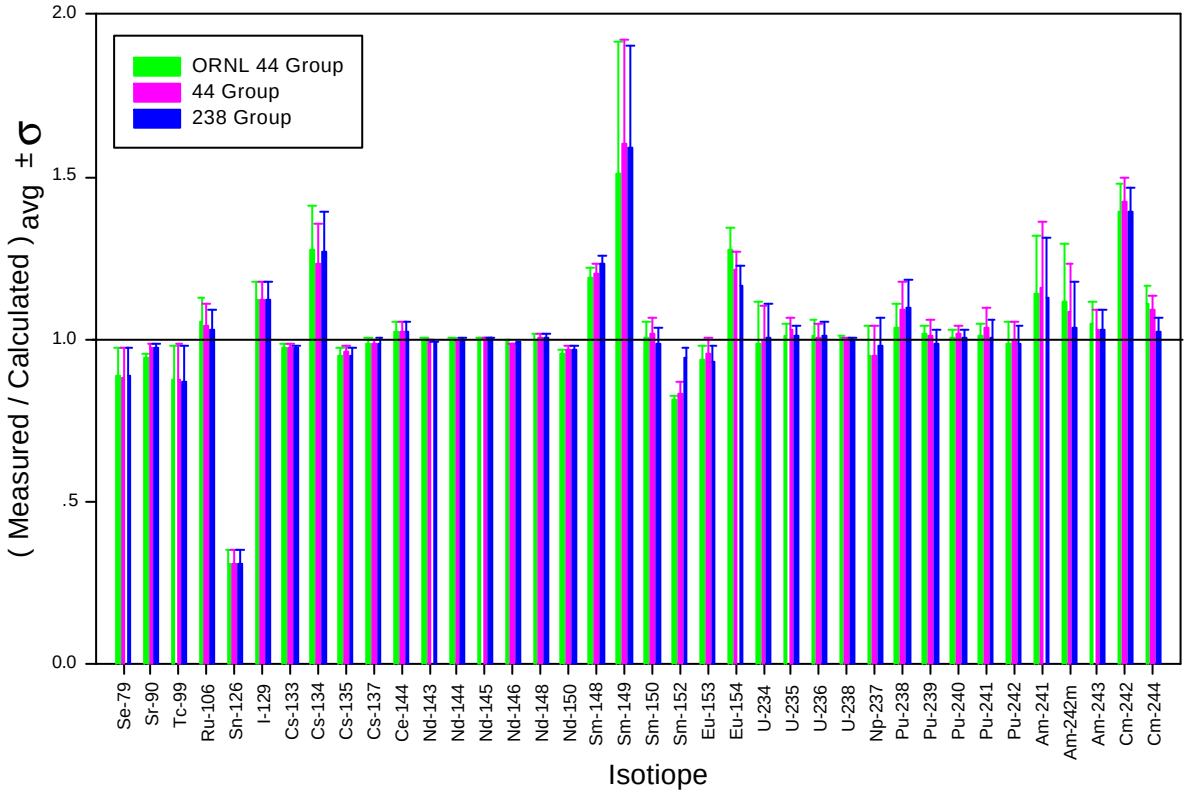

Fig. 5. Comparison of Average Ratios(Measured/Calculated) in the Cases of 44 and 238 Groups.