

碩士學位論文

사용후핵연료 처리공정물질의
핵물질 비파괴분석을 위한 중성자
증배 보정인자에 관한 연구



濟州大學校 大學院

에너지工學科

金 眩 助

2001年 12月

사용후핵연료 처리공정물질의
핵물질 비파괴분석을 위한 중성자
증배 보정인자에 관한 연구

指導教授 朴在雨

金 眩 助

이 論文을 工學 碩士學位 論文으로 提出함



金眩助의 工學 碩士學位 論文을 認准함

審査委員長 李憲周 印

委 員 朴在雨 印

委 員 金皓東 印

濟州大學校 大學院

2001年 12月

A Study on Neutron Multiplication Factor for
Non-Destructive Analysis of Nuclear Material
in Process Materials of Spent Fuels

Hyun-Jo Kim

(Supervised by Professor Jae-Woo Park)



A THESIS SUBMITTED IN PARTIAL FULFILLMENT OF
THE REQUIREMENTS FOR THE DEGREE OF MASTER OF
ENGINEERING

DEPARTMENT OF NUCLEAR AND ENERGY ENGINEERING
GRADUATE SCHOOL
CHEJU NATIONAL UNIVERSITY

2001. 12.

목 차

LIST OF FIGURES	iii
LIST OF TABLES	v
NOMENCLATURE	vi
SUMMARY	vii
I. 서 론	1
II. 이론적 배경	3
1. 핵물질 측정법	3
1.1 감마선 분광분석법	3
1.2 중성자 검출법	4
2. 중성자검출법에 의한 핵물질 분석원리	5
3. 우물형 He-3 중성자검출기의 설계 특성	8
4. Multiplication과 Leakage Multiplication의 개념	12
5. Shift Register를 이용한 중성자 증배 보정	14
5.1 직접측정법	14
5.2 Monte Carlo 방법	17
5.2.1 MCNP Code 특징	17
5.2.2 MCNP Code 계산법	18

III. 증성자 증배 측정 실험	20
1. 실험 장치	20
2. 실험 방법	22
2.1 Geometry를 고려하지 않은 실험	22
2.2 Geometry를 고려한 실험	22
IV. 결과 및 고찰	26
1. 직접 측정법	26
2. Monte Carlo 방법	26
3. Geometry를 고려하지 않은 실험 결과	27
3.1 직접측정	27
3.2 MCNP Code 계산	27
3.3 직접측정과 MCNP Code 계산의 비교	31
4. Geometry를 고려한 실험 결과	35
4.1 직접측정	36
4.2 MCNP Code 계산	37
4.3 직접측정과 MCNP Code 계산의 비교	39
V. 결 론	41
참고문헌	42

LIST OF FIGURES

Fig. 1 Strategy of DUPIC nuclear material safeguards by neutron detection method	7
Fig. 2 Time interval distribution of shift register input-signals	7
Fig. 3 Schematic of DSNC	9
Fig. 4 Leakage multiplication model	13
Fig. 5 Neutron measurement system for assay	21
Fig. 6 Photograph of sintered pellets	24
Fig. 7 Measurement weight of sintered pellets	24
Fig. 8 Photograph of putting sintered pellets into a holed container	25
Fig. 9 Photograph of loading the container with sintered pellets into the DSNC	25
Fig. 10 Leakage multiplication as a function of total mass for sintered pellets obtained DSNC measurement (single element)	29
Fig. 11 Leakage multiplication and total multiplication as a function of total mass for sintered pellets obtained from MCNP calculation (single element)	31
Fig. 12 Leakage multiplications as a function of total mass for sintered pellets obtained from MCNP calculation and DSNC measurement (single element)	32
Fig. 13 Geometry of sintered pellets element	33
Fig. 14 Leakage multiplication as a function of total mass for sintered	

pellets obtained from MCNP calculation and DSNC measurement (single and multi element)	34
Fig. 15 Geometry of sintered pellets element by MCNP	35
Fig. 16 Leakage multiplication as a function of total mass for sintered pellet elements obtained from DSNC measurement	37
Fig. 17 Geometry of DUPIC bundle	38
Fig. 18 Leakage multiplication for sintered pellets and DUPIC bundle obtained from MCNP calculation and DSNC measurement	40



LIST OF TABLES

Table 1 Result of chain reaction	18
Table 2 Composition of sintered pellet in DUPIC fuel	21
Table 3 DSNC setup parameters	23
Table 4 Measurement data and result of sintered pellets obtained from DSNC measurement (single element)	28
Table 5 Result of sintered pellets obtained from MCNP simulation (single element)	30
Table 6 Result of sintered pellets obtained from MCNP simulation (multi element)	33
Table 7 Measurement data and result of sintered pellet elements obtained from DSNC measurement	36
Table 8 Result of sintered pellet elements obtained from MCNP calculation	39

NOMENCLATURE

S	:	singles rate
D	:	doubles rate
M	:	total multiplication
M_L	:	leakage multiplication
α	:	(α, n) neutron/spontaneous fission neutron
ϵ	:	측정 효율
F_S	:	초당 핵분열수
$f = e^{-\lambda d}(1 - e^{-\lambda G})$:	doubles gate 비율
λ	:	붕괴상수
d	:	pre-delay length
G	:	gate length
$\overline{\nu_{S(1)}}$:	자발핵분열중성자에 대한 first order factorial moment
$\overline{\nu_{S(2)}}$:	자발핵분열중성자에 대한 second order factorial moment
$\overline{\nu_{I(1)}}$:	유도핵분열중성자에 대한 first order factorial moment
$\overline{\nu_{I(2)}}$:	유도핵분열중성자에 대한 second order factorial moment
MTHM	:	metric ton heavy metal

SUMMARY

The quantity of uranium or plutonium present in bulk samples of metal, oxide, mixed-oxide, fuel rods, etc., can often be assayed nondestructively by means of neutron coincidence counting. There are three neutron sources emitting in those bulk samples. They include a non-coincident neutron from (α,n) reactions and coincident neutrons from spontaneous fissions and induced fissions. Since the neutrons emitting in the process material of spent fuel are mostly spontaneous fission neutron, it is possible to account the nuclear material by measuring the spontaneous fission neutron using the coincident neutron counter, so-called Shift Register. In this circumstance, induced neutron, which is another coincident neutron, can lead to perturb passive coincidence counting and resultant nuclear material accounting. The self-multiplication phenomenon, which results from the induced fissions existing within the sample, inevitably generates measurement errors. Therefore, in order to reduce the measurement error of the passive coincidence counter, the degree of self-multiplication in the process material have to be examined, and then the resultant counting must be corrected.

Ensslin has developed a measurement method to estimate self-multiplication effect in passive coincidence counting, which introduce a singles/doubles ratio concept in well-characterized material and process material.

In this study, neutron multiplication effects were investigated by the measurement method proposed by Ensslin, and then the correction curves of neutron multiplication were derived. For this, DSNC (DUPIC Safeguards Neutron Counter), a well-typed neutron coincidence counter, was used. In addition, the neutron multiplication effects were verified by comparison with the result of MCNP code.

From the simulation and experimental results, the self-multiplication in small

samples were in the range of 1.006 ~ 1.012 which were increased with the sample mass. The code simulation result for self-multiplication in fuel bundle with 20kgHM of mass was about 1.027. The results of the measurement technique showed a good agreement with those of the Monte Carlo calculations with the well defined geometry of the samples.

We hope that the neutron multiplicity correction curve obtained from this study will be used to increase measurement accuracy of the well-typed neutron accounting system in the future.



I. 서 론

에너지 부존 자원이 빈약한 우리나라는 장기 에너지 수급계획에 의해 석유 대체 전원개발을 추진하기 위하여 원자력 발전을 확대하여 왔다. 그러나 현재 국제 원자력 정세는 원자력의 평화적 목적 이용보다는 핵비확산 측면에서 국제적 제약이 강화되는 추세이며 원자력 선진국은 원자력 핵심기술의 상업적 독점과 원자력 발전소 및 핵연료 수입국에 대하여 핵비확산 측면에서 계속적으로 영향력을 행사하고 있다.

원자력의 평화적 이용 및 기술개발을 적극 추진하고 있는 우리나라로서는 국가 원자력 활동에 대한 투명성 및 신뢰성 확보가 필수적이다. 특히, 원자력발전소와 사용후핵연료 저장시설 등과 같은 품목계수(item-counting) 시설뿐만 아니라 최근에는 DUPIC(Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU Reactors) 시설과 같은 중량계수(bulk-counting) 시설들이 국내에 도입됨으로서 국제적인 핵투명성 확보를 위한 기반 기술 확보가 중요하게 되었다. 이러한 측면에서 IAEA(International Atomic Energy Agency)의 관리 대상 핵물질인 SNM(Special Nuclear Material)을 측정할 수 있는 핵물질 계량 기술 개발은 매우 중요하다.

일반적으로 핵물질의 양을 분석하기 위한 방법은 크게 화학분석에 의존하는 파괴적인 방법(DA, Destructive Analysis)과 비파괴적인 방법(NDA, Non-Destructive Analysis)이 사용되고 있다. 파괴적인 방법은 정밀도가 높으나 분석 시간이 길어 대규모 상용시설에는 사용하기가 어렵다. 따라서 최근에는 감마선 또는 중성자 측정을 통하여 핵물질의 양을 분석하는 비파괴적인 방법이 개발되어 핵연료 제조시설, 농축 시설 등 중량계수 시설에 널리 쓰이고 있다.

비파괴적인 방법은 불순물이 없는 순수한 연료(신 UO_2 핵연료, MOX 핵연료 등)에는 사용이 가능하나 사용후핵연료를 직접 다루는 공정에는 사용하기가 쉽지 않은 것으로 알려져 있다[김호동, 1999]. 그 이유는 사용후핵연료내에는 자발중성자를 방출하는 actinide 핵종, 감마선을 내는 핵분열생성물 등이 많이 포함되어 있기 때문이다. 그러나 연소도 20,000MWD/MTU이상, 냉각기간 10년 이상의 특정한 사용후핵연료인 경우 Cm-244에서 방출하는 시간 동기적인 중성자(coincidence neutron)를 측정함으

로서, 간접적으로 핵물질의 양을 평가하는 방법이 제안되었다[김호동, 1999]. 이러한 개념의 측정시스템은 공정물질의 물리적인 형태에 따라 유도핵분열에 의한 추가적인 중성자의 방출 가능성이 제기되어 왔으며, 이를 보완하지 않을 경우 측정오차를 증가시킬 수 있는 것으로 알려져 있다[Ensslin, 1991].

따라서 본 논문에서는 사용후핵연료를 공정물질로 직접 취급하는 시설에서 시간 동기적인 중성자 측정을 통한 핵물질 측정시 발생할 수 있는 오차를 줄이기 위한 방안을 제안하였으며, 사용후핵연료 공정물질에서 유도핵분열에 의해 발생하는 중성자 증배 효과를 평가하였다. 이를 위하여 한국원자력연구소에서 DUPIC 공정물질에서 핵물질 분석용으로 개발된 우물형 중성자 검출기를 사용하였으며 비파괴적인 방법으로 사용후핵연료 공정물질에서 발생하는 중성자 증배효과를 보정하였다[이영길, 1999]. 또한 중성자 증배효과에 대한 이론적 배경에 근거한 실험적 측정치와 Monte Carlo 전산모사를 통한 계산치를 비교·분석함으로써 도출된 중성자 증배보정 계수치의 신뢰성을 확인하였다.



II. 이론적 배경

1. 핵물질 측정법

핵물질 측정방법에는 NDA(Nondestructive Assay)와 DA(Destructive chemical Assay)가 있다. 현재 IAEA 등은 주로 NDA기법을 이용하여 특별 핵물질을 검증하고 있다.

NDA 방법은 핵물질로부터 자발적으로 방출되거나 유도된 방사선을 측정하는 방법으로, 핵물질의 물리·화학적 상태를 변화시키지 않는다는 장점이 있다. NDA방법은 방출되는 방사선의 종류와 에너지가 동위원소에 따라 독특하고, 방사선강도는 동위원소의 질량과 관련됨을 이용한다. NDA 방법은 DA 방법보다 정확하지 않으나 핵물질을 손상하지 않고 현장에서 즉각적인 측정결과를 얻을 수 있고 작업자의 방사선 피폭을 감소시킬 수 있으므로 핵물질 안전조치분야에서 많이 사용되고 있다.

NDA방법은 감마선 분광분석법에 의한 핵물질 계량방법과 중성자 검출법에 의한 핵물질 계량방법으로 나눌 수 있으며 다음에 기술하는 바와 같다[정미영, 1996].

1.1 감마선 분광분석법

IAEA 안전조치가 관여하는 대부분의 핵물질은 감마선을 방출하며, 이 감마선은 그 물질의 비파괴 분석에 이용될 수 있다. 방사성 동위원소로부터 나오는 감마선은 동위원소에 따라 특정 에너지와 강도를 갖는다. 감마선 에너지는 핵물질의 종류를 판단할 수 있는 정보를 갖고 있고, 측정된 감마선의 강도는 핵물질의 양, 동위원소의 조성을 판단하는 정보를 갖는다. 그러므로 검출기와 다중과고 분석기로 구성된 장치를 이용하여 감마선 에너지스펙트럼을 측정, 분석하여 임의의 시료에 존재하는 핵물질을 계량할 수 있다. 또한, 비파괴분석시 측정목적에 따라 감마선 에너지와 강도를 동시에 검출하기도 한다.

가장 일반적으로 사용되는 감마선 검출기는 NaI(Tl) 섬광검출기, HPGe 반도체 검출기 또는 CdTe(Cadmium Telluride)검출기이다.

NaI(Tl) 검출기는 검출기창을 크게 제작할 수 있으며 일반적으로 HPGe 검출기보다 감마선 검출 효율이 높다. 안전조치에서 NaI(Tl) 검출기는 보통 핵분열생성물에서 나오는 감마선을 측정하여 사용후핵연료의 존재 여부를 판별하는데 사용되고 있다. NaI(Tl) 검출기는 세 종류의 검출기 중에서 에너지 분해능이 가장 낮으며 따라서 근접한 에너지의 감마선을 구별해 내는 능력이 별로 좋지 않다.

HPGe 검출기는 NaI(Tl) 검출기에 비해 에너지분해능이 훨씬 우수하기 때문에 복잡한 감마선 스펙트럼을 분석하여 물질에 포함되어 있는 동위원소 조성에 관해 알고자 할 때 적당하다. 그러나 항상 액체질소로 냉각시켜야 한다는 단점이 있다.

표준 CdTe 검출기는 냉각이 필요치 않고 세 검출기 중에서 고유검출효율이 가장 높다. 크기가 작기 때문에 휴대성이 좋고 특히 국한된 공간에서의 사용에 알맞기 때문에 물속에 밀봉된 채로 쌓여있는 사용후핵연료 다발을 확인 검사하는 경우에 사용된다. 최근에는 훨씬 큰 CdTe 검출기가 제작되었는데 그 부피는 1500 mm^3 이고, 실질적인 검출효율이 향상되고있다[김호동, 2000].

1.2 중성자 검출법

중성자 검출법에 의한 분석은 감마선 분광분석법과는 달리 중성자 에너지 스펙트럼을 측정하는 것이 아니며 단지, 중성자수를 측정하여 핵물질의 양을 측정하는 방법이다.

일반적으로, 고방사능 작업구역 내에서 사용후핵연료 물질 측정은 핵분열생성물이 방출하는 높은 감마선영향과 주변 matrix 물질에 의한 차폐영향으로 감마선 분광분석시스템을 도입하는 것이 적절치 못하다. 따라서 사용후핵연료의 경우 일정시간이 경과한 이후부터 방출되는 중성자수가 일정하므로 중성자 검출법을 사용하는 것이 더욱 보편화되고있다.

사용후핵연료에서 방출되는 중성자는 크게 (α, n) 반응에 의한 중성자, 자발핵분열 중성자, 유도핵분열 중성자로 구분된다. 외부의 중성자 조사없이 자발핵분열 중성자

와 (a,n)반응에 의한 중성자를 방출하는 시료는 중성자를 계측함으로써 분석할 수 있으며 이런 방법을 수동적 방법(passive method)이라 한다. 또한 단위시간당 방출되는 중성자수가 적은 시료인 경우 외부 중성자 선원(Am-Li 등)을 사용하여 시료를 조사시켜 인위적인 핵분열을 유도한 후, 이때 발생하는 중성자를 검출하여 시료를 분석할 수 있으며, 이러한 방법을 능동적 방법(active method)이라 한다[이영길, 1996].

수동적 방법으로 시료를 분석하는 경우, 측정 대상이 되는 시료 속에 경원소가 혼합되어 있다면 이들에 의해 생성되는 (a,n) 중성자수가 상당히 증가하며, 시료의 양에 따라 유도핵분열 중성자수가 증가하게 된다.

능동적 방법으로 시료를 분석하는 경우 시료에 의한 중성자와 더불어 외부 선원에 의한 중성자가 항상 동시에 검출된다. 따라서 중성자 측정을 통한 핵물질 계량에서는 총중성자검출법(total neutron measurement)보다 동시측정법(time coincidence measurement)이 많이 사용되고 있다. 총중성자검출법은 시료에서 방출되는 (a,n) 중성자, 자발핵분열 중성자, 유도핵분열 중성자를 모두 검출하는 반면, 동시측정법은 시간상관적인 중성자만을 검출한다.

핵물질 계량에 있어서 중성자의 동시측정법은 총중성자검출법에 비하여 정확도가 높으나 시료의 기하학적 구조 및 화학적 구성 성분에 대한 변화를 보정하기 어렵다. 또한 시료자체의 중성자 흡수효과 및 핵분열과 핵반응중성자에 의한 증배효과 등으로 핵물질 계량에 있어서 큰 오차를 일으키게 되는 단점을 갖고있다[노성기, 1987].

2. 중성자검출법에 의한 핵물질 분석원리

본 연구에서는 중성자 동시측정법을 이용하여 핵물질을 분석할 때 오차를 발생하는 원인중 하나인 중성자 증배효과를 분석하였다. 실험을 위하여 사용후핵연료를 직접 다루고 있는 한국원자력연구소에서 사용하는 공정물질인 DUPIC 소결체를 사용하였다.

DUPIC 공정은 사용후 PWR 핵연료봉을 고준위방사성물질 취급시설인 hot-cell에서 절단, 해체한 후 핵연료의 연소 상태에 따라 U-235 또는 감손 우라늄을 추가하고

가압중수로형 핵연료인 CANDU 핵연료 조건을 만족하는 CANDU 핵연료 다발을 생산하는 것이다.

DUPIC 공정에서는 사용후핵연료의 물리적 형태, 밀도 등이 변할 뿐만 아니라 U-235 또는 감손 우라늄이 추가되어 핵물질 조성도 변하게 된다. 그러나 재처리 공정과는 달리 DUPIC 공정 전후를 통하여 사용된 사용후핵연료의 양은 변하지 않는다. 그러므로 사용후핵연료의 양을 확인할 수 있는 방법 중 하나인 핵연료로부터 방출되는 중성자를 검출하는 방법을 적용할 수 있다.

사용후핵연료내에서 발생할 수 있는 중성자는 전술한 바와 같이 자발핵분열 중성자, 유도핵분열 중성자 및 (α, n) 중성자이다. Fig. 1에서 보는 바와 같이 1개의 다발을 제조하는데 필요한 사용후핵연료에서 단위시간당 100개의 중성자가 방출되고 이것이 자발핵분열 중성자 90개, 유도핵분열 중성자 4개, (α, n) 중성자 6개로 구성되었다고 할 경우, 생산된 DUPIC 핵연료 다발에서의 중성자 특성은 자발핵분열 중성자 90개를 제외하고는 모두 변한다. 유도핵분열 중성자와 (α, n) 중성자의 수가 변하는 이유는 핵연료의 밀도, 물리적 형태, 핵분열물질의 함량 등이 다르기 때문이다. 이 경우 사용된 사용후핵연료의 양이 동일하기 때문에 자발핵분열 중성자의 수는 변하지 않는다.

시간독립적인 중성자인 (α, n) 중성자의 신호가 갖는 시간 분포는 시간에 상관없이 일정한 중성자분포를 갖으며 시간상관적인 중성자인 자발핵분열 중성자와 유도핵분열 중성자 신호가 갖는 시간분포는 지수함수적 분포를 따른다. SNM 물질의 (α, n) 중성자에 의한 시간독립적인 신호와 자발핵분열 또는 유도핵분열 중성자에 의한 시간상관적인 신호가 shift register로 입사하면 shift register의 신호 시간분포는 위에서 설명한 두 가지 시간분포를 합성한 분포가 되며 Fig. 2와 같다. Fig. 2에 포함되어 있는 시간상관적인 신호는 shift register의 gate폭 만큼의 시간 상관에서 이루어지며 gate폭 내에 포함되어 있는 시간독립적인 신호의 면적을 A, 시간상관적인 신호의 면적을 R이라고 하면 시간상관적인 신호값은 $(R+A)-A$ 으로 구할 수 있다.

Spent PWR Fuel

DUPIC Fuel

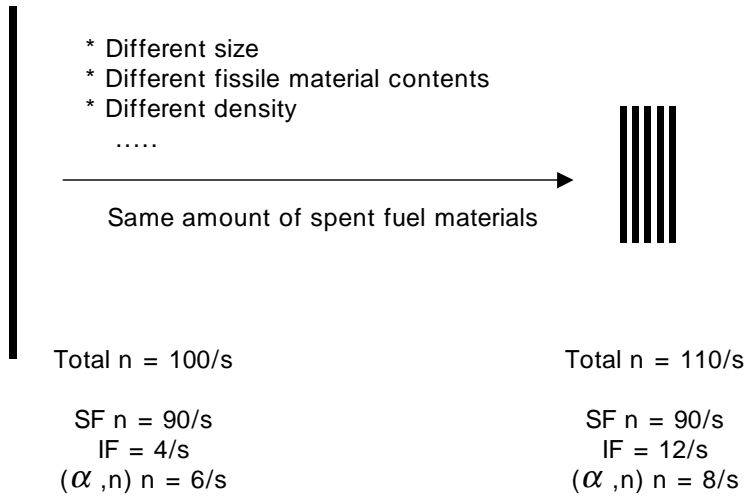


Fig. 1 Strategy of DUPIC nuclear material safeguards by neutron detection method

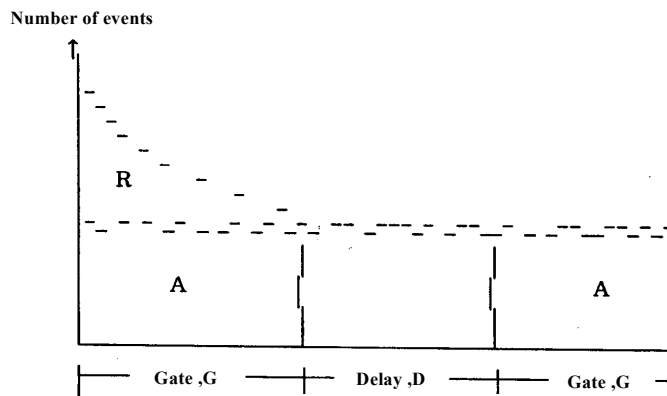


Fig. 2 Time interval distribution of shift register input-signal

DUPIC 핵연료로 사용하고 있는 연소도가 20GWD/MTU 이상인 가압경수로의 사용후핵연료는 10년 이상 냉각시킨 핵연료로서 방출되는 중성자 중에서 자발핵분열 중성자가 약 97.2%며, 나머지는 (α,n) 중성자이다. 또한 대부분(약 99%)의 중성자원은 Cm-244에서 방출되는 자발핵분열 중성자이다. 그러므로 자발핵분열 중성자를 측정하여 Cm-244의 양을 평가하고, ORIGEN Code에 의해 결정된 Cm 비율, 즉, Cm/Pu, Cm/U-235를 이용하여 핵물질 안전조치상에서 관리대상 핵물질인 Pu 및 U 양을 평가하고 있다[이영길, 1999].

3. 우물형 He-3 중성자검출기의 설계 특성

DUPIC 핵연료 제조 공정에서는 공정 원료물질인 사용후핵연료를 직접 취급하며 사용후핵연료에 포함된 민감한 핵물질인 플루토늄을 함유하고 있어 철저한 핵물질 계량관리가 요구된다. DUPIC 핵연료주기 기술개발을 수행하고 있는 한국원자력연구소에서는 미국 로스알라모스 국립연구소와 공동으로 비파괴적인 방법을 이용하여 원격으로 핫셀내 핵물질을 간접적으로 측정할 수 있는 중성자 검출장치(일명, DSNC : DUPIC Safeguards Neutron Counter)를 개발하였다[이영길, 1999].

Fig. 3은 DSNC에 대한 재질과 구조를 나타낸 것이다. 이 중성자 검출장치는 고준위감마선을 방출하는 사용후핵연료로 제조된 DUPIC 핵연료의 중성자를 검출하여야 하는 특수성으로 인하여 일반적인 중성자 검출기와는 다른 설계 특성을 가지고 있다.

DSNC는 DUPIC 공정으로 들어오는 절단된 사용후 PWR 핵연료봉, 공정중의 분말시료, DUPIC 핵연료봉, DUPIC 핵연료다발 그리고 잔유물 등을 측정할 수 있도록 설계되었다. DUPIC 핵연료다발이 아닌 다른 측정 대상시료의 기하학적형상에 따라 중성자분포는 비균질성을 가지므로 검출기 내부의 측정위치에 따라 검출효율이 차이가 나는 경우 동일한 시료라 할지라도 서로 다른 결과를 나타낸다. 이러한 영향을 제거하기 위해서는 검출효율을 균일하게 해주어야 한다. 이를 위하여 검출장치의 상단 양단은 중앙부보다 낮은 검출효율을 갖기 때문에 양단의 검출효율을 증가시키기 위하여 graphite를 사용한 상단 중성자반사체와 nikel로 된 하단 중성자반사체를 부착하

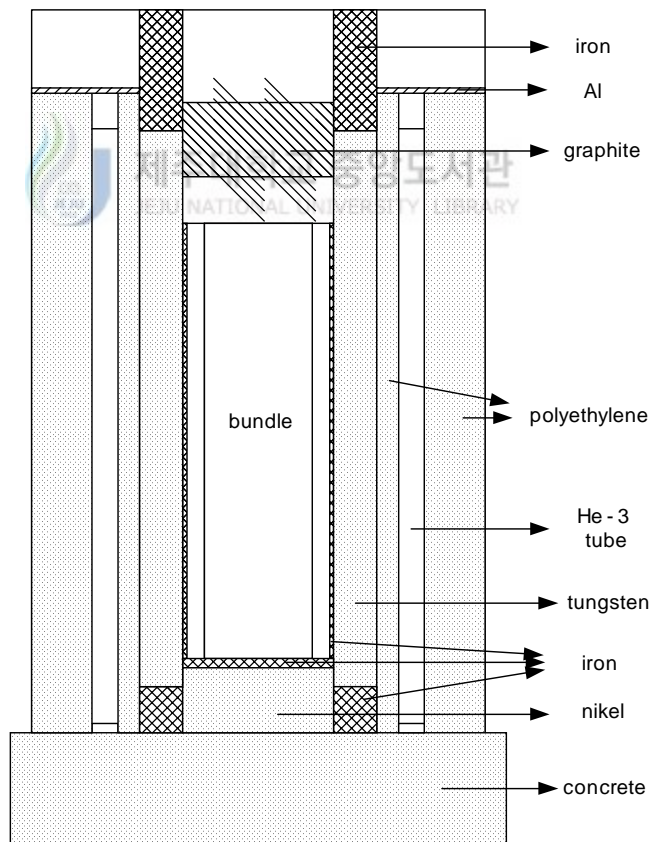
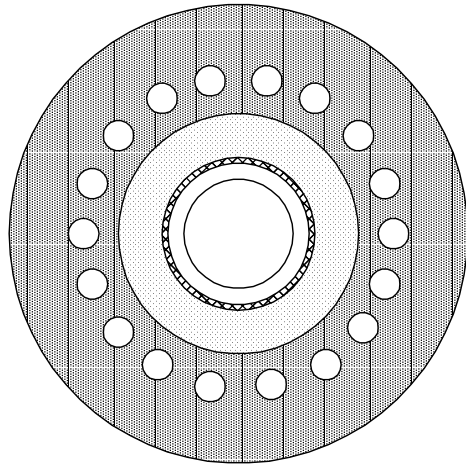


Fig. 3 Schematic of DSNC

었다[이영길, 1999].

우물형 중성자 계측기로부터 획득된 중성자 신호는 동시계수기(shift register)라는 전자 장비를 통하여 DUPIC 공정물질에서 방출되는 자발핵분열 중성자와 (a, n) 중성자로 분리되어 분석된다. 이 동시계수기는 시간 상관적으로(time correlated) 발생하는 자발핵분열 중성자와 시간 독립적으로(time independent) 방출되는 (a, n) 중성자를 분리하지만, 시간 상관적으로 발생하는 자발핵분열 중성자와 유도핵분열 중성자는 구별하지 못한다. 따라서 측정 시료에 유도 핵분열이 발생하여 새로운 중성자가 방출되는 경우 전체 중성자 중에서 자발핵분열에 의한 중성자와 유도핵분열에 의한 중성자를 서로 구별해 낼 수 없다. 그러므로 시간 상관적인 중성자를 모두 자발핵분열 중성자에 의한 것으로 간주하면 핵물질의 양이 과대 평가될 가능성이 존재하며, 핵물질 측정시 이를 고려하지 않을 경우 핵물질 측정 오차로 작용하게 된다. 사용후 핵연료에 있어서 이러한 유도핵분열 중성자수는 자발핵분열 중성자수에 비하여 매우 미미한 것으로 알려져 있으나, 핵분열성물질의 농도가 높은 MOX 핵연료 등에서 흔히 나타나는 현상이다. 사용후핵연료에서도 측정 시료의 밀도, 양 등이 증가함에 따라 이러한 중성자의 발생 가능성도 예견할 수 있다.

일반적으로 shift register를 이용하여 중성자수를 측정하기 위해 다음과 같은 이론식을 적용하고 있다[이영길, 1996].

$$S_C(M_L) = \varepsilon M_L F_S \overline{\nu_{S(1)}} (1 + a) \quad (1)$$

$$D_C(M_L) = \varepsilon^2 f M_L^2 F_S \left[\overline{\nu_{S(1)}} + \frac{M_L - 1}{\nu_{I(1)} - 1} \overline{\nu_{S(1)} \nu_{I(2)}} (1 + a) \right] \quad (2)$$

여기서,

S_C : singles rate,

D_C : doubles rate,

M_L : leakage multiplication,

$a \equiv (a, n)$ neutron/spontaneous fission neutron,

ε : 측정 효율,

F_S : 초당 핵분열수,

$f = e^{-\lambda d}(1 - e^{-\lambda G})$: doubles gate 비율,

λ : 붕괴상수,

d : pre-delay length,

G : gate length,

$\overline{\nu_{S(1)}}$: 자발핵분열중성자에 대한 first order factorial moment,

$\overline{\nu_{S(2)}}$: 자발핵분열중성자에 대한 second order factorial moment,

$\overline{\nu_{I(1)}}$: 유도핵분열중성자에 대한 first order factorial moment,

$\overline{\nu_{I(2)}}$: 유도핵분열중성자에 대한 second order factorial moment.

식(1), (2)에서 singles rate의 물리적 의미는 시간 독립적인 (a,n) 중성자와 시간 상관적인 자발핵분열중성자 및 유도핵분열중성자가 모두 고려된 전체 중성자를 의미하며, doubles rate는 시간 상관적인 중성자수를 의미한다.

현재 사용하는 DSNC는 shift register를 이용하여 시간 상관적인 중성자를 측정하고 있어, 유도핵분열 중성자의 발생이 미미할 경우에는 문제가 되지 않지만, 많이 발생할 경우에는 DSNC의 새로운 측정오차를 유발하게 된다. 이와 같은 shift register를 이용한 중성자 동시계수시 발생하는 중성자 증배를 보정하는 방안들이 제시되어 왔다. 유도핵분열 중성자에 의한 영향을 보정해 주기 위한 방법에는 Ensslin이 제안한 MCNP code를 이용하는 방법과 직접 측정방법이 많이 사용되고 있다[Ensslin, 1979]. 직접측정방법은 두 가지 측정시료, 즉, 유도핵분열이 없는 시료와 유도핵분열이 일어날 수 있는 시료를 이용하여 singles rate와 doubles rate를 각각 측정한 후 이들간의 비율을 계산하여 유도핵분열 정도를 보정해 주는 방법이다. 또한 MCNP code를 이용하는 방법은 측정대상시료와 동일한 조성을 가지면서 무게를 달리하는 표준시료가 있는 경우 이로부터 MCNP code 계산을 하여 표준시료 측정치의 중성자 증배 보정곡선식을 만들고 이것을 이용하는 방법이다.

4. Multiplication과 Leakage Multiplication의 개념

중성자 증배(neutron multiplication)현상은 시료의 자발 핵분열 또는 (α,n)반응에 의한 중성자가 시료 자체내에서 유도핵분열을 일으키거나 유도핵분열 중성자가 이차적인 유도핵분열을 발생하는 것이다. 중성자 증배 개념은 self-multiplication 또는 leakage multiplication을 포함하고 있으며 다음과 같이 해석할 수 있다.

Multiplication은 핵반응이 일어나는 시료 자체의 관점에서 본 것으로 다음과 같은 식으로 표현된다.

$$M = \frac{\text{시료에 존재하는 총 중성자}}{\text{반응초기에 시료에 존재하는 중성자}}$$

처음 세대에서의 중성자수와 다음 세대의 중성자수 비를 중성자 증배계수(neutron multiplication factor : k)라 하며 다음과 같다.

$$k = \frac{\text{현재대가 시료내에 갖는 중성자}}{\text{전세대가 시료내에 갖는 중성자}}$$

무한계에 대한 중성자 증배계수는 k_{∞} 로 나타내며 유한계에 대한 중성자 증배계수는 k_{eff} 으로 표시한다. 무한증배계수 k_{∞} 는 시료의 크기가 무한히 커서 이론상으로 중성자 누설이 없다고 가정하는 경우의 증배계수이며 유한증배계수 k_{eff} 는 시료의 크기가 유한하므로 중성자 누설이 고려된 개념이다.

Leakage multiplication 혹은 self-multiplication은 핵반응이 일어나는 시료를 둘러싸고 있는 중성자 검출기의 관점에서 본 중성자 증배계수이며 다음과 같이 주어진다.

$$M_L = \frac{\text{시료를 빠져나가는 중성자}}{\text{반응초기에 시료에 존재하는 중성자}}$$

즉, M_L 은 우물형 검출기 시스템의 측정 시료에서 검출기 쪽으로 방출되는 중성자 수를 시료 자체내에서 생성된 중성자 수로 나누어 준 값으로 정의된다. M_L 의 크기는 시료의 조성비, matrix 물질, 그리고 기하학적 구조 등에 따라서 차이가 난다.

Fig. 4를 이용하면 leakage multiplication의 개념을 설명할 수 있다. Fig. 4에서 보는 바와 같이 초기 중성자인 (1)이 시료물질과 상호작용 없이 직접 시료를 빠져 나올 경우 검출되는 중성자는 1개이지만 그림과 같은 상호작용을 할 경우 이 중성자로 인하여 최종적으로 검출기로 빠져 나오는 중성자수는 2개이므로 $M_L = \frac{2}{1}$ 가 된다. 이 경우 시료내에서 생성, 소멸하는 중성자수는 leakage multiplication에 전혀 기여하지 못한다. Fig. 4의 괄호는 중성자검출기의 관점에서 한 단계 앞선 generation의 중성자를 뜻한다.

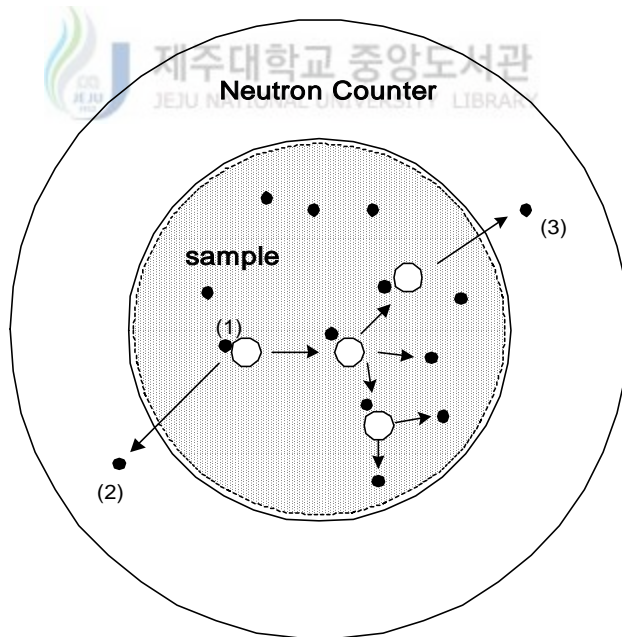


Fig. 4 Leakage multiplication model

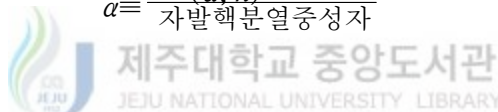
5. Shift Register를 이용한 중성자 증배 보정

5.1 직접측정법

Ensslin은 열중성자 동시계수기(thermal neutron coincidence counter)에서 중성자 증배 영향을 설명하기 위한 방법을 제시하였다. 이 방법은 측정시료에서 자발핵분열 중성자수와 (α, n) 중성자수의 비인 α 값을 알고 있는 경우에 매우 유용한 방법으로 알려지고 있다[Ensslin, 1979]. Ensslin이 제안한 접근 방법은 다음과 같다.

1) 측정시료의 α 값을 알아낸다.

$$\alpha \equiv \frac{(\alpha, n) \text{ 중성자}}{\text{자발핵분열중성자}} \quad (3)$$



2) 유도 핵분열이 일어나지 않을 것으로 생각되는 밀도가 낮고 소량의 시료를 취하여 동시계수기로 singles rate(S_0), doubles rate(D_0)를 측정하고 α 값을 계산하며 이 값을 α_0 로 둔다.

3) 중성자 증배 보정이 요구되는 시료를 취하여 동시계수기로 singles rate(S_c), doubles rate(D_c)을 측정하고 α 값을 계산한다.


4) 1)과 2)에서 측정된 singles rate, doubles rate의 비를 다음과 같이 r 로 정의하여 계산한다.

$$r \equiv \frac{\frac{D_c(M_L)}{S_c(M_L)}(1 + \alpha)}{\frac{D_0}{S_0}(1 + \alpha_0)} \quad (4)$$

일반적으로 유도핵분열이 일어나는 경우, singles rate 보다는 doubles rate가 더 크게 증가하므로 ν 값은 1 보다 큰 값을 가지게 된다. 또한 ν 값은 동일 측정 장비로 측정되는 것이기 때문에 측정효율, die-away time, doubles gate 등 측정장치의 파라미터 값과는 무관하게 된다. 따라서 상기한 ν 값을 다음과 같이 식 (1) 및 식 (2)에서 정의된 이론식과 연결할 수 있다. 즉, S_C 과 D_C 의 비는 식 (1)과 (2)를 이용하여 다음과 같이 구해진다.

$$\frac{D_C(M_L)}{S_C(M_L)} = \epsilon f M_L \frac{\frac{1}{\nu_{S(2)}} + \frac{M_L - 1}{\nu_{I(1)} - 1} \frac{1}{\nu_{S(1)}\nu_{I(2)}(1 + \alpha)}}{\nu_{S(1)}(1 + \alpha)} \quad (5)$$

또한 S_0 와 D_0 의 비는 식 (5)에서 $M_L = 1$, $\alpha = \alpha_0$ 을 대입하면 구해진다.



$$\frac{D_0}{S_0} = \epsilon f \frac{1}{\nu_{S(1)}(1 + \alpha_0)} \quad (6)$$

식 (5) 와 식 (6)을 식 (4)에 대입하면 γ 에 대해 다음과 같이 유도된다.

$$r = \frac{\frac{D_C(M_L)}{S_C(M_L)}(1 + \alpha)}{\frac{D_0}{S_0}(1 + \alpha_0)} = M_L \frac{\frac{1}{\nu_{S(2)}} + \frac{M_L - 1}{\nu_{I(1)} - 1} \frac{1}{\nu_{S(1)}\nu_{I(2)}(1 + \alpha)}}{\nu_{S(2)}} \quad (7)$$

여기서 핵자료로부터 얻어질 수 있는 또 다른 k 값을 다음과 같이 정의한다.

$$k \equiv \frac{1}{\nu_{I(1)} - 1} \frac{1}{\nu_{S(2)}} \quad (8)$$

식 (8)을 식 (7)에 대입하면 다음과 같이 종속변수 M_L 을 갖는 2차식을 유도할 수 있

다. 즉,

$$\begin{aligned} \gamma &= M_L[1 + (M_L - 1)(1 + \alpha)k] \\ k(1 + \alpha)M_L^2 + [1 - k(1 + \alpha)]M_L - \gamma &= 0 \\ M_L &= \frac{-B + \sqrt{B^2 - 4AC}}{2A} \end{aligned} \quad (9)$$

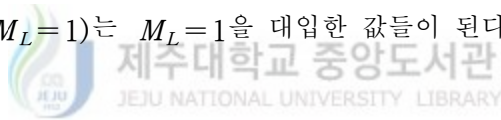
여기서, $A = k(1 + \alpha)$,

$$B = 1 - k(1 + \alpha) = 1 - A,$$

$$C = -\gamma.$$

5) α 를 갖는 측정시료의 M_L 에 의한 영향을 보정한다.

만약 측정시료가 M_L 을 갖지 않는다면 이때 얻어지는 dead-time을 보정한 S_C ($M_L = 1$)와 $D_C(M_L = 1)$ 는 $M_L = 1$ 을 대입한 값들이 된다.



$$S_C(M_L = 1) = \varepsilon F_S \overline{\nu_{S(1)}} (1 + \alpha)$$

$$D_C(M_L = 1) = \varepsilon^2 f F_S \overline{\nu_{S(2)}}$$

따라서, 중성자 증배효과를 보정한 측정시료의 singles rate와 doubles rate는 다음과 같이 표현될 수 있다.

$$\frac{S_C(M_L)}{S_C(M_L = 1)} = M_L \rightarrow S_C(M_L = 1) = \frac{S_C(M_L)}{M_L} \quad (10)$$

$$\frac{D_C(M_L)}{D_C(M_L = 1)} = \frac{\varepsilon^2 f M_L^2 F_S [\overline{\nu_{S(2)}} + \frac{M_L - 1}{\nu_{I(1)} - 1} \overline{\nu_{S(1)} \nu_{I(2)}} + (1 + \alpha)]}{\varepsilon^2 f F_S \overline{\nu_{S(2)}}}$$

$$\begin{aligned}
&= M_L M_L \frac{\frac{M_L - 1}{\nu_{S(2)} + \frac{M_L - 1}{\nu_{I(1)} - 1}} \frac{\nu_{S(1)} \nu_{I(2)} + (1 + a)}{\nu_{S(2)}}}{\nu_{S(2)}} = M_L \gamma \\
\rightarrow D_C(M_L = 1) &= \frac{D_C(M_L)}{M_L \gamma} \quad (11)
\end{aligned}$$

지금까지 유도된 식으로부터 유도핵분열이 없는 측정시료와 유도핵분열이 예상되는 시료를 이용하여 singles rate와 doubles rate가 각각 측정된다면 식 (9)를 이용하여 leakage multiplication을 구할 수 있으며 식 (10) 및 식 (11)을 이용하여 중성자 증배효과를 보정한 singles rate 및 doubles rate를 구할 수 있다.

5.2 Monte Carlo 방법

5.2.1 MCNP Code 특징



제주대학교 중앙도서관
JEJU NATIONAL UNIVERSITY LIBRARY

MCNP code(Monte Carlo N-Particle transport code)는 미국 로스알라모스 국립 연구소에서 개발되었으며 중성자, 광자, 전자의 수송을 Monte Carlo 방법으로 계산하는 코드로서 복잡한 3차원 기하학적 구조의 표현이 가능하고 많은 variance reduction technique들이 지원된다. Monte Carlo 방법은 입자의 생성으로부터 소멸까지의 행로를 실험을 통하여 추적하듯이 컴퓨터를 활용하여 모의 추적하는 방법이다. 입자가 반응하기까지 진행하는 거리, 반응의 유형, 반응 후 진행방향과 에너지 등 반응의 변수는 무작위수를 사용하여 각 변수의 확률밀도 분포함수로부터 결정된다. 중성자나 양자 그리고 전자 등과 같은 입자 하나 하나의 거동을 tallying에 의하여 통계적으로 분석한 후 핵적 계수를 계산한다. 또한 MCNP code의 계산 결과는 신뢰가 높아 다른 계산 코드의 검증 코드로 이용되고 있다[노규홍, 1999].

5.2.2 MCNP Code 계산법

MCNP code를 이용하는 방법은 측정대상시료와 동일한 조성을 가지면서 무게를 달리하는 표준시료들로부터 보정곡선식을 만들고 이것을 이용하는 방법이다. Monte Carlo 방법은 event에 참여하는 중성자의 전체 수를 알아낼 수 있기 때문에 coincidence response를 계산하는데 적합하다.

1회의 유도핵분열에 의해서 평균적으로 $\overline{\nu_{I(1)}}$ 개의 중성자가 발생되며 이때 갖는 ‘net neutron profit’ 은 $\overline{\nu_{I(1)}} - 1$ 개가 된다. 따라서 연쇄반응의 결과는 Table 1과 같이 주어진다. 여기서 p 는 1개의 중성자가 시료내에서 유도핵분열을 일으킬 확률을 의미한다.

Table 1 Result of chain reaction

Generation	Number of fissions	Neutrons Created	Net neutron profit
0		1(source)	1
1	p	$(p \overline{\nu_{I(1)}})$	$p(\overline{\nu_{I(1)}} - 1)$
2	$p(p \overline{\nu_{I(1)}})$	$(p \overline{\nu_{I(1)}})^2$	$p(p \overline{\nu_{I(1)}})(\overline{\nu_{I(1)}} - 1)$
3	$p(p \overline{\nu_{I(1)}})^2$	$(p \overline{\nu_{I(1)}})^3$	$p(p \overline{\nu_{I(1)}})^2(\overline{\nu_{I(1)}} - 1)$
4	$p(p \overline{\nu_{I(1)}})^3$	$(p \overline{\nu_{I(1)}})^4$	$p(p \overline{\nu_{I(1)}})^3(\overline{\nu_{I(1)}} - 1)$

앞에서 정의한 바와 같이 모든 generation에서 하나의 source neutron 으로부터 생성된 중성자의 합은 M 이다. 따라서 앞에서 정의한 multiplication은 다음과 같이 표현된다.

$$M = \frac{1}{1 - p\overline{\nu_{I(1)}}} = \frac{1}{1 - k} \quad (k < 1) \quad (12)$$

$$\begin{aligned}
M_L &= \{1 + p(\overline{\nu_{I(1)}} - 1) + p(p \overline{\nu_{I(1)}})(\overline{\nu_{I(1)}} - 1) + p(p \overline{\nu_{I(1)}})(\overline{\nu_{I(1)}} - 1) + \dots\} \cdot \frac{p_L}{p_C + p_L} \\
&= \left\{1 + \frac{p(\overline{\nu_{I(1)}} - 1)}{1 - p \overline{\nu_{I(1)}}}\right\} \cdot \frac{p_L}{p_C + p_L} \\
&= \frac{1 - p}{1 - p \overline{\nu_{I(1)}}} \cdot \frac{p_L}{1 - p} \\
&= \frac{p_L}{1 - p \overline{\nu_{I(1)}}} \quad \left(= \frac{1 - p - p_C}{1 - p \overline{\nu_{I(1)}}} \right) \\
&= M \cdot p_L \\
\therefore M_L &= M \cdot p_L \tag{13}
\end{aligned}$$

여기서 p_L 은 1개의 중성자가 시료를 빠져나갈 확률이고 p_C 는 1개의 중성자가 시료 내에서 포획될 확률이다.

식 (12)에서 중성자 증배계수 k 는 MCNP code의 KCODE로부터 계산할 수 있다. 따라서 식 (13)과 같이 total multiplication은 MCNP code로부터 구한 k 값으로부터 계산하고 leakage multiplication은 total multiplication값에 leakage probability를 곱하여 도출할 수 있으며, 식 (13)에서의 leakage probability 역시 MCNP code로부터 계산할 수 있다.

중성자 source particle은 자발핵분열과 (a,n) 반응으로부터 발생한다. Source subroutine에서 자발핵분열은 $\frac{N_{SF}}{(N_{SF} + N_{an})}$ 의 확률을 갖고 초기 event로 선택되고

(a,n) 반응은 $\frac{N_{an}}{(N_{SF} + N_{an})}$ 의 확률을 갖고 선택된다.

Ensslin에 의하면 일반적으로 (a,n) 중성자에 대한 leakage multiplication은 자발 핵분열 중성자에 대한 leakage multiplication의 0.5%이내이다[Ensslin, 1979]. 따라서 본 연구에서는 MCNP code로 계산된 모든 leakage multiplication결과에 대해 (a,n) 반응에 의한 증가분을 보정하기 위한 보정계수로 0.5%를 적용하였다.

III. 중성자 증배 측정 실험

1. 실험 장치

본 연구에서는 DUPIC 핵연료 소결체내에서의 유도핵분열 중성자에 의한 중성자 증배 효과를 분석하기 위해서 수동적 우물형 중성자검출기인 DSNC를 이용하여 시료를 측정하였다.

수동적 중성자검출원리에 의해서 핵물질을 분석하기 위한 시스템은 Fig. 5에 나타난 바와 같다. Fig. 5에 보는 바와 같이 IMEF(Irradiated Materials Examination Facility)시설내의 M6b 핫셀내에 있는 DSNC를 통해 검출된 전기적 신호는 portable shift register에 입력된다. 여기서 처리된 중성자신호는 portable shift register와 연결된 PC로 전달되며 계량관리 프로그램인 INCC(IAEA Neutron Coincidence Counter) 프로그램을 이용해 데이터를 수집 및 분석한다.

본 실험에 사용된 시료는 동일 batch에서 얻은 DUPIC 소결체를 사용하였다. 소결체는 압분체를 환원분위기 1700℃이상의 고온에서 고밀화시킨 것이며 반경 0.542cm, 높이 1.2cm이고 밀도는 10.3 g/cm^3 이다. 실험에 사용된 소결체의 조성은 Table 2와 같다.

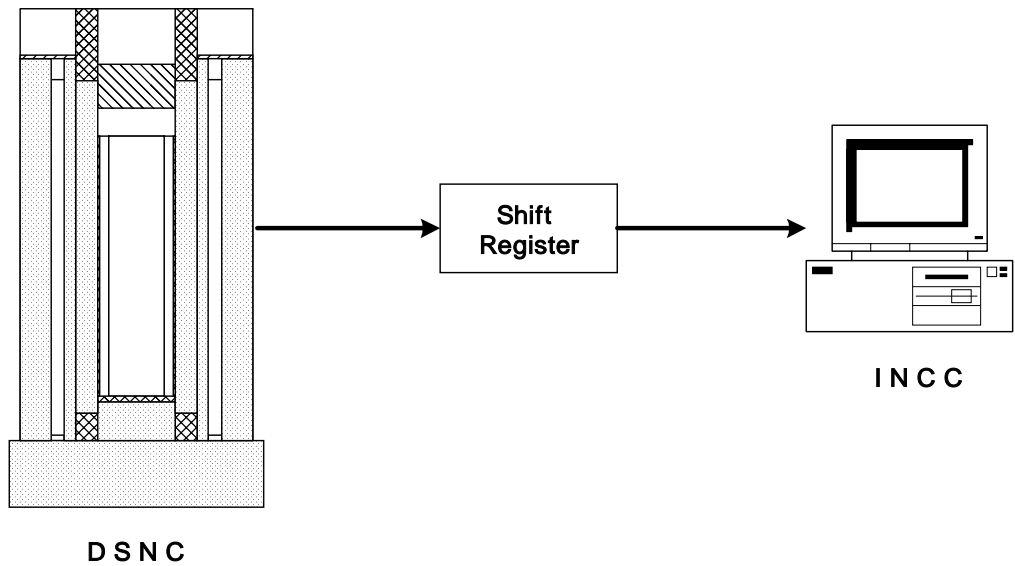


Fig. 5 Neutron measurement system for assay

Table 2 Composition of sintered pellet in DUPIC fuel

Isotope	g/MTHM
U-235	8.19E+03
U-236	4.36E+03
U-238	9.41E+05
PU-239	5.33E+03
PU-240	2.20E+03
PU-241	7.52E+02
PU-242	4.57E+02
AM-241	4.97E+02
AM-243	9.13E+01
CM-244	1.85E+01
O-16	1.16E+05

2. 실험 방법

2.1 Geometry를 고려하지 않은 실험

본 실험은 소결체의 무게가 증가함에 따른 multiplication을 알기 위한 실험이다. 식 (9)를 이용하여 multiplication을 계산하기 위해서는 singles rate와 doubles rate의 비인 γ 값을 알아야 한다. 따라서 본 연구에서는 DSNC를 이용하여 다음과 같은 과정을 통해 DUPIC 핵연료 소결체의 singles rate와 doubles rate를 측정하였다.

- 1) 우선 multiplication을 분석하기 위해 소결체 16개를 준비하였다.
- 2) 시료를 넣지 않은 DSNC의 배경방사능을 측정하여 오차를 보정해 준다.
- 3) 소결체 하나의 무게를 측정하고 플라스틱 용기 안에 넣는다.
- 4) 이 용기를 DSNC에 넣어 측정한다.
- 5) 실험이 끝나면 또 다른 소결체의 무게를 측정한 후 소결체가 들어 있는 플라스틱 용기에 넣고 다시 DSNC로 측정한다.

이와 같은 과정을 16개의 소결체에 대해 20초씩 10회 반복하여 실험하였으며, 측정조건은 Table 3과 같다. 이는 DSNC 인증시험에서 결정된 값이다[이영길, 1999].

2.2 Geometry를 고려한 실험

본 실험은 geometry를 잘 알고 있는 시료에 대해서 multiplication을 분석한 실험이다. 첫 번째 실험인 경우에는 플라스틱 용기에 소결체를 넣을 때 시료가 어떻게 놓여 있는지 알 수 없었다. 그러므로 두 번째 실험은 시료의 geometry를 정확하게 하기 위해 구멍이 뚫려 있는 stainless steel 용기를 준비하여 소결체를 element형태로 쌓아서 측정하였다. 실험과정은 Fig. 6~9에 나타난 바와 같으며 다음과 같은 절차로 진행하였다.

- 1) 첫 번째 실험과 마찬가지로 먼저 시료를 제거한 DSNC의 배경방사능을 측정하여 오차를 보정한다.
- 2) Fig. 6, 7과 같이 소결체의 무게를 측정한다.
- 3) 무게를 잰 소결체를 Fig. 8과 같이 구멍이 뚫린 용기 안에 넣는다.
- 4) Fig. 9와 같이 시료가 들어있는 용기를 DSNC안에 넣어 측정한다.

이상의 실험에서 측정조건은 첫 번째 실험과 동일하고, 측정시간은 10초씩 20회를 하였다. 이때 용기의 구멍 하나당 5개의 소결체를 넣어 시료의 질량이 400g이 될 때까지 측정하였으며, DSNC의 측정오차를 고려하여 각각의 경우 위치를 바꿔서 5회 측정하고 그 평균값을 사용하였다.

Table 3 DSNC setup parameters

Parameter		Value
High Voltage		1820V
Gate		64μsec
Predelay		4.5μsec
Dead time Constant	a	0.90
	b	0.45
	c	0.00
	multiplicity	350
Efficiency		13.48%
Calibration Constant		1.186E+5 counts/s.g Cm-244

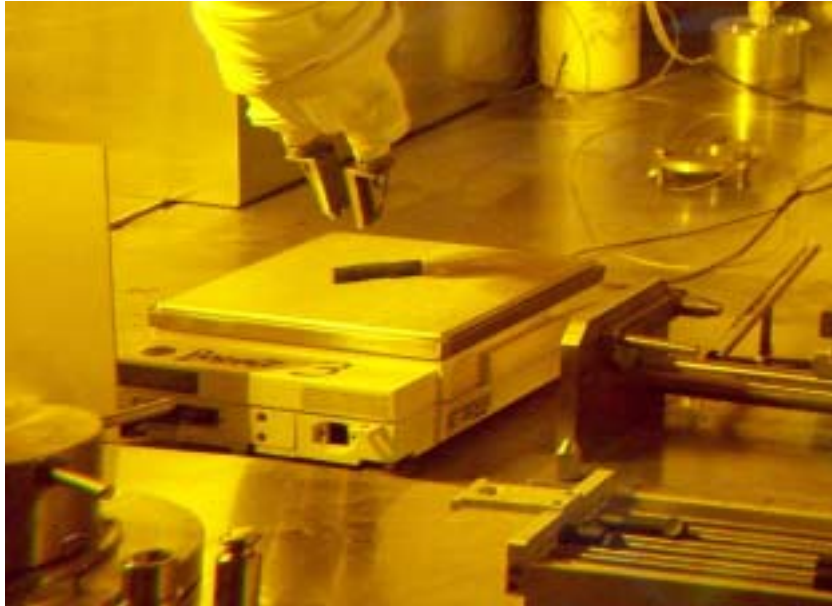


Fig. 6 Photograph of sintered pellets



Fig. 7 Measurement weight of sintered pellets

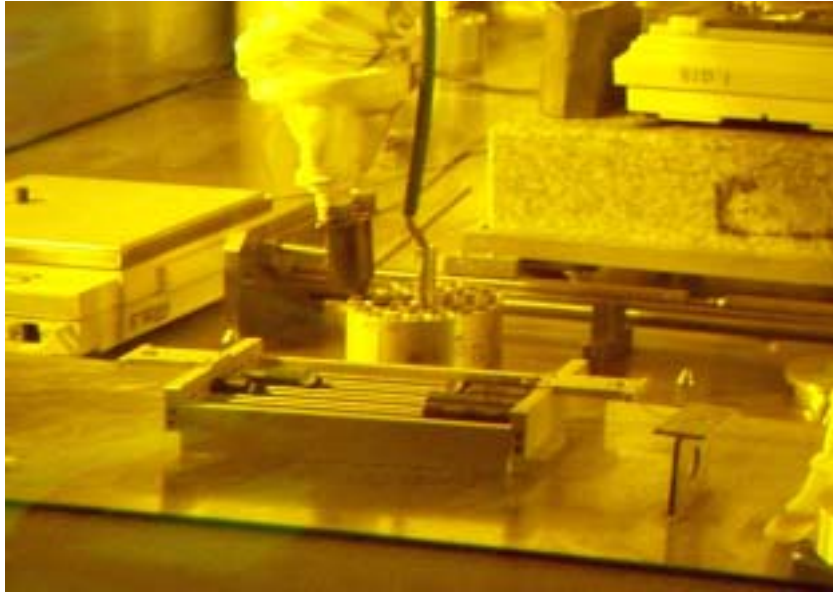


Fig. 8 Photograph of putting sintered pellets into a holed container

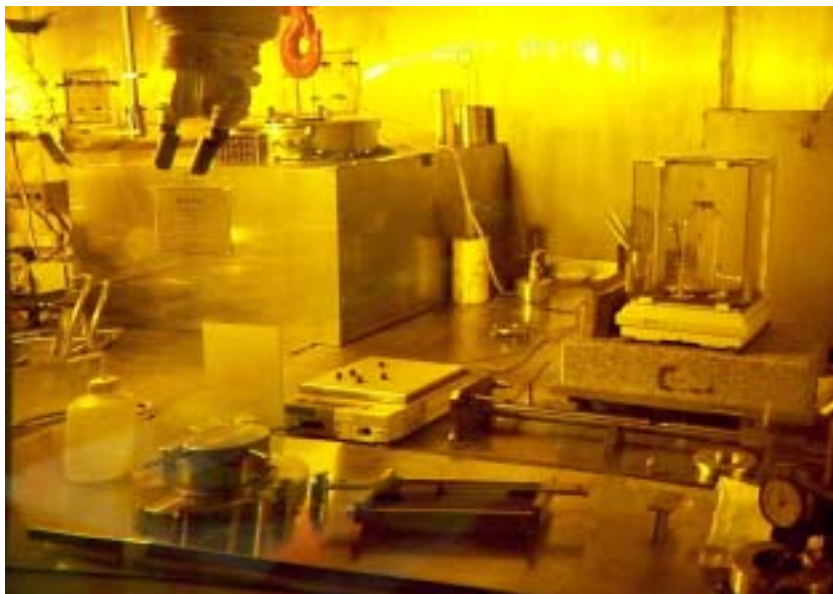


Fig. 9 Photograph of loading the container with sintered pellets into the DSNC

IV. 결과 및 고찰

1. 직접 측정법

DSNC를 이용하여 DUPIC 핵연료 공정 시료를 측정된 자료와 측정이론식을 이용하여 소결체에서 발생 가능한 중성자 증배 효과를 계산하였다.

먼저 측정대상 시료와 동일한 matrix로 구성되어 있는 시료중에서 무게가 작은 시료를 유도핵분열이 없는 시료(즉, multiplication이 없는 시료)로 가정하여 표준시료로 사용하였다. 그리고 DSNC를 이용하여 이 표준시료의 singles rate 및 doubles rate를 측정하여 S_0 및 D_0 라 하였다. 그리고 소결체 시료에서 측정된 singles rate 및 doubles rate를 측정하여 S_M 및 D_M 이라 하고 이를 이용하여 소결체에서의 증배효과를 분석하였다.

본 연구에서는 α 값을 현재 DUPIC 공정물질로 사용하고 있는 가압경수로 사용후 핵연료에 대해서 핵연료 연소도 모사 코드인 ORIGEN code를 이용하여 계산한 값을 이용하였다[Croff, 1980]. ORIGEN code 계산 결과 얻어진 자발핵분열 중성자와 (α, n) 중성자수를 식 (3)에 대입하여 계산된 α 값은 다음과 같다.

$$\alpha = \frac{6.356 \times 10^6 n/s \text{ MTU}}{2.114 \times 10^8 n/s \text{ MTU}} = 0.0301$$

2. Monte Carlo 방법

첫 번째 실험은 플라스틱 용기에 소결체를 하나씩 넣은 경우이기 때문에 정확한 geometry를 알 수 없었다. 따라서 MCNP code 계산모델은 플라스틱 용기에 소결체

가 서로 쌓여서 구형을 이룬다고 가정하고 계산을 수행하였다. 또한, 시료의 개수가 증가함에 따라 질량이 증가하므로 질량과 밀도에 의해서 각각의 반지름을 계산하고 그에 따른 계산모델을 적용하였다.

두 번째 실험은 geometry를 알고있는 용기에 소결체를 넣어 측정하였다. 그러므로 용기안에 들어있는 시료의 geometry를 그대로 MCNP code로 모델링 하였다.

3. Geometry를 고려하지 않은 실험 결과

3.1 직접측정

Table 4는 본 실험에서 측정한 singles rate와 doubles rate로 식 (9)에 대입하여 Ensslin이 제안한 직접측정법으로부터 중성자 증배 영향을 계산한 결과를 나타낸다. 여기서 D/S 는 DSNC로 측정한 doubles rate와 singles rate의 비를 나타낸다. 그리고 D_0/S_0 는 소결체시료 중에서 가장 작은 질량을 가진 10.56g의 값을 사용하였다.

Fig. 10은 소결체시료의 무게함수로 계산한 multiplication을 나타낸 그림이다. Fig. 10에서 보는 바와 같이 측정결과에 의한 multiplication값은 특정한 분포경향을 나타내지 않고 있음을 알 수 있다. 따라서 본 연구에서는 이러한 결과를 해석하기 위해서 multiplication을 보정하는 또 다른 방법인 MCNP code 계산을 수행하였다.

3.2 MCNP Code 계산

Table 5는 소결체의 multiplication을 MCNP code로 계산한 결과이다. 본 실험의 경우 실험과정에서 시료가 놓여져 있는 형태에 따라 MCNP code 계산 결과가 달라진다. Table 5는 소결체를 용기 안에 집어넣을 때 서로 쌓여서 뭉쳐져 구의 형태를 갖는다고 가정하고 계산한 결과이다. 여기서 k_{eff} 는 유효중성자 증배계수이고 P 는 escape probability, P_{total} 는 total leakage probability를 의미한다. 또한 M 은 k_{eff} 값

으로부터 얻어진 total multiplication이고, M_L 은 leakage probability를 고려해준 leakage multiplication이다.

Fig. 11은 소결체 시료의 무게 함수로 MCNP code로 계산된 multiplication을 나타낸 그림이다. 그림에서 보는 바와 같이 MCNP 모사에서는 질량이 증가함에 따라 multiplication이 증가함을 알 수 있다.

Table 4 Measurement data and result of sintered pellets obtained from DSNC measurement (single element)

Mass(g)	Singles	Doubles	D/S	Gamma	A	B	C	M_L
10.56	397.90	30.97	0.0778	1.0000	3.0903	-2.0903	-1.0000	1.0000
21.04	790.62	65.70	0.0831	1.0676	3.0903	-2.0903	-1.0676	1.0163
31.54	1232.78	101.24	0.0821	1.0550	3.0903	-2.0903	-1.0550	1.0133
42.18	1658.40	142.43	0.0859	1.1034	3.0903	-2.0903	-1.1034	1.0248
53.11	1979.12	160.04	0.0809	1.0389	3.0903	-2.0903	-1.0389	1.0094
64.06	2367.59	189.01	0.0798	1.0256	3.0903	-2.0903	-1.0256	1.0062
75.04	2843.58	235.37	0.0828	1.0634	3.0903	-2.0903	-1.0634	1.0153
85.61	3221.40	268.19	0.0833	1.0696	3.0903	-2.0903	-1.0696	1.0168
95.32	3563.34	284.61	0.0799	1.0262	3.0903	-2.0903	-1.0262	1.0064
104.61	3956.28	326.82	0.0826	1.0613	3.0903	-2.0903	-1.0613	1.0148
114.00	4229.29	346.23	0.0819	1.0518	3.0903	-2.0903	-1.0518	1.0125
124.27	4637.90	375.30	0.0809	1.0396	3.0903	-2.0903	-1.0396	1.0096
133.83	5089.00	422.25	0.0830	1.0660	3.0903	-2.0903	-1.0660	1.0159
144.18	5359.18	430.78	0.0804	1.0327	3.0903	-2.0903	-1.0327	1.0079
153.32	5686.94	458.09	0.0806	1.0349	3.0903	-2.0903	-1.0349	1.0085
162.94	6213.40	517.73	0.0833	1.0705	3.0903	-2.0903	-1.0705	1.0170

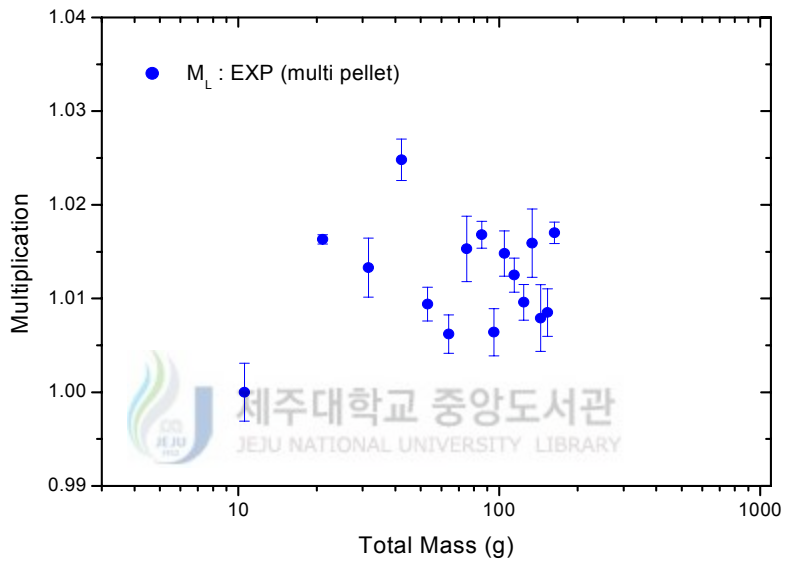


Fig. 10 Leakage multiplication as a function of total mass for sintered pellets obtained DSNC measurement (single element)

Table 5 Result of sintered pellets obtained from MCNP simulation (single element)

Mass(g)	k_{eff}	M	P	P_{total}	M_L
1.413	0.00535	1.00538	0.9976	1.0001	1.00357
2.294	0.00631	1.00635	0.99716	1.0003	1.00429
14.869	0.01167	1.01181	0.99483	1.0004	1.00748
20.221	0.01288	1.01305	0.99419	1.0005	1.00817
42.788	0.01659	1.01687	0.99245	1.0006	1.0103
126.916	0.02370	1.02428	0.98904	1.0006	1.01416
148.462	0.02502	1.02566	0.98837	1.0006	1.01485
200.000	0.02741	1.02818	0.98724	1.0009	1.01648
400.000	0.03471	1.03596	0.98383	1.0019	1.02063
600.000	0.03994	1.04160	0.98125	1.0012	1.02381
800.000	0.04323	1.04518	0.97966	1.0011	1.02556
1000.000	0.04696	1.04927	0.97757	1.0012	1.02748

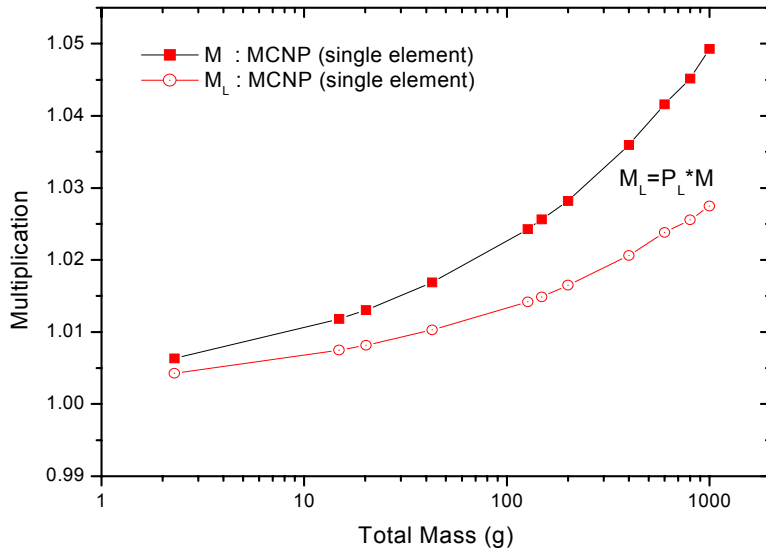


Fig. 11 Leakage multiplication and total multiplication as a function of total mass for sintered pellets obtained from MCNP calculation (single element)

3.3 직접측정과 MCNP Code 계산의 비교

Fig. 12는 직접측정법과 MCNP code 계산으로 얻은 multiplication값을 비교한 그래프이다. Fig. 12에서 보는 바와 같이 측정값이 오차의 범위 내에서 MCNP code로 얻은 결과에 걸쳐져 있는 것도 있지만 대부분의 측정값이 MCNP code 결과와 많은 차이를 보이고 있다. Fig. 12의 MCNP code 결과는 소결체가 단일의 형태를 갖고 있다고 가정하고 계산한 값이기 때문이다. 따라서, 본 연구에서는 실험과정에서 발생될 수 있는 MCNP code계산 모델을 가정하였으며 이에 대한 계산을 수행하였다. 즉, 16개의 소결체를 하나씩 용기에 넣어 측정하는 경우, 이들 소결체들이 서로 모여 단일한 형태와 근사한 형태를 가질 수도 있으나, Fig. 13과 같이 소결체가 element를 이루어 일정하게 떨어져 위치하게 되는 경우도 가정할 수 있다.

Fig. 13과 같은 모델을 가정하여 MCNP code로 계산한 값을 Table 6과 Fig. 14에 제시하였다. Fig. 15는 MCNP code로 계산한 시료의 단면을 보여준다. Fig. 14에서 보듯이 직접측정법에 의해 얻어진 값들이 두 곡선을 따라 분포함을 알 수 있다. 즉, 실험과정에서 소결체의 geometry에 따라 multiplication 분포가 두 부분으로 나누어짐을 알 수 있다. 소결체들이 뭉쳐 있는 경우는 유도 핵분열이 많이 일어나기 때문에 multiplication이 커서 위쪽에 분포하고 떨어져 있는 경우는 유도 핵분열이 적게 일어나기 때문에 multiplication이 작기 때문에 아래쪽에 분포하고 있다. 또한, 시료의 위치나 모양이 매우 다양할 수 있으므로 직접측정법에 의한 값이 MCNP code값에서 약간 벗어나는 것을 볼 수 있다. 본 실험은 정확한 geometry를 알지 못한 상태에서 실험하고 계산하였기 때문에 MCNP code 곡선을 보정곡선으로 사용하기 위해서는 더욱 정확한 계산이 필요하다고 판단되었으며 두 번째 실험을 진행하였다.

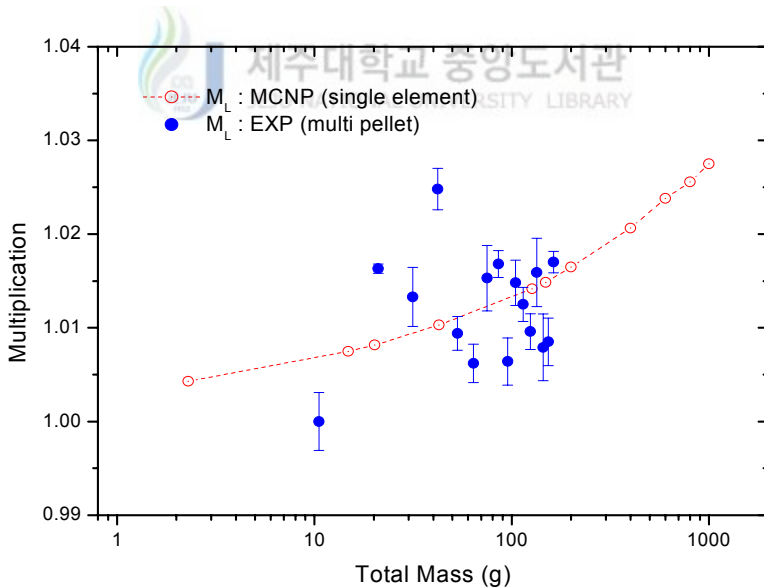


Fig. 12. Leakage multiplications as a function of total mass for sintered pellets obtained from MCNP calculation and DSNC measurement (single element)

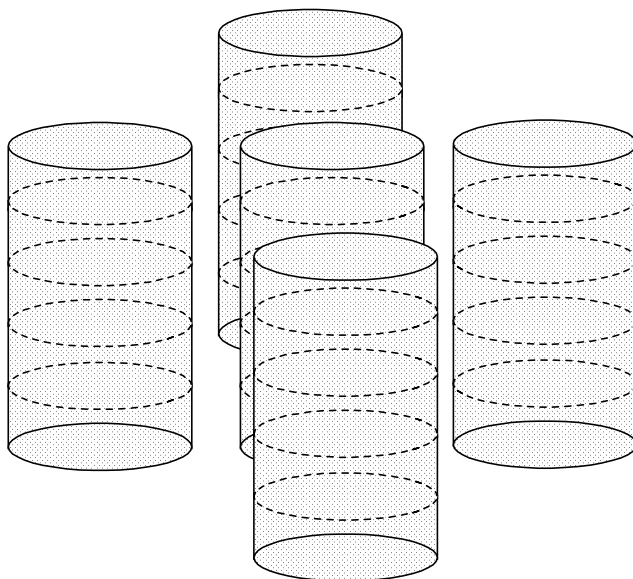


Fig. 13 Geometry of sintered pellets element

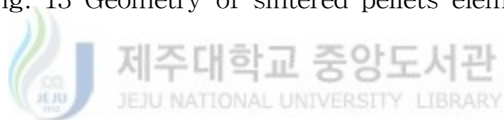


Table 6 Result of sintered pellets obtained from MCNP simulation (multi element)

Mass(g)	k_{eff}	M	P	P_{total}	M_L
10.14	0.01047	1.01058	0.99517	1.0003	1.006504
20.28	0.01230	1.01245	0.99456	1.0004	1.007852
30.42	0.01308	1.01325	0.99401	1.0005	1.008191
40.56	0.01354	1.01373	0.99385	1.0004	1.008398
50.70	0.01397	1.01417	0.99365	1.0006	1.008837
50.70	0.01372	1.01391	0.99370	1.0005	1.008531
101.40	0.01467	1.01489	0.99323	1.0004	1.008925
152.09	0.01519	1.01542	0.99300	1.0004	1.009224
202.78	0.01585	1.01611	0.99277	1.0004	1.009667
253.48	0.01747	1.01778	0.99208	1.0007	1.010932

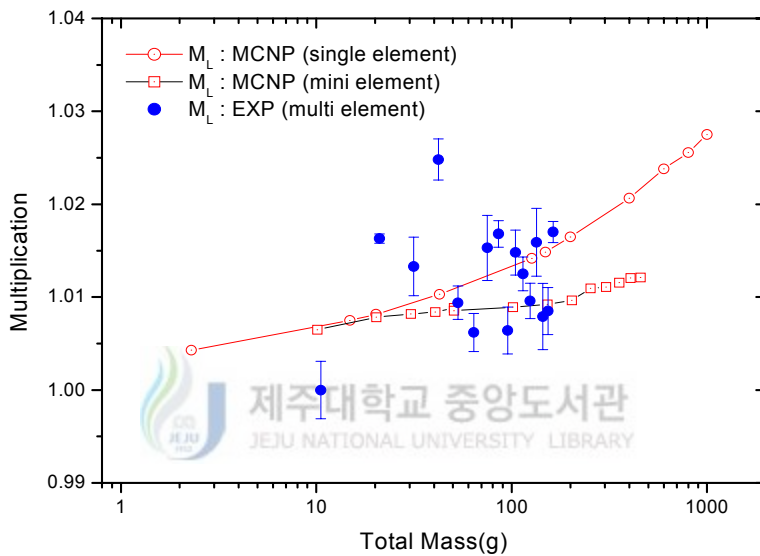


Fig. 14. Leakage multiplication as a function of total mass for sintered pellets obtained from MCNP calculation and DSNC measurement (single and multi element)

```

08/14/01 14:58:38
Insert title word here

probid = 08/14/01 14:58:38
basis
| 1.000000  0.000000  0.000000
| 0.000000  1.000000  0.000000
| 0.000000  0.000000  1.000000
origin
| 0.00  0.00  1.00
extent = | 10.00  10.00

```

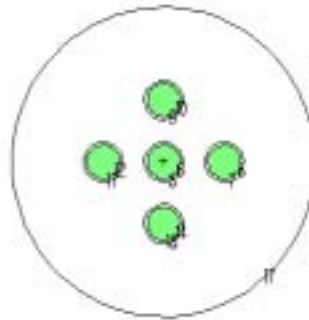


Fig. 15 Geometry of sintered pellets element by MCNP



4. Geometry를 고려한 실험 결과

DSNC를 이용해 시료를 측정할 경우 multiplication에 대한 MCNP code 곡선을 보정식으로 사용하기 위해서는 직접측정법에 의한 값과 MCNP code 계산값이 거의 일치함을 보여서 MCNP code 곡선이 타당함을 보여야 한다.

첫 번째 실험의 경우에는 소결체가 거의 단일한 형태를 하고 있는지 아니면 element를 이루었는지 그리고 element를 이루었다 하더라도 각 element사이의 거리는 얼마나 되는지 알 수 없었다. 따라서 직접측정에 의한 결과와 MCNP code 결과의 정확한 비교·분석을 수행할 수 없었다. 그러므로 소결체의 geometry를 알고 있는 실험조건에서 실험하기 위해 소결체가 일정한 element형태를 가질 수 있도록 위치를

고정할 수 있는 용기를 준비하여 실험을 진행하였다.

이 실험에서 얻어진 직접측정값과 MCNP code 계산값을 비교하여 MCNP code로부터 얻은 보정곡선이 타당함을 보여주게 되면 조성과 geometry를 알고 있는 시료의 multiplication값을 미리 예측할 수 있다.

4.1 직접측정

Table 7은 geometry를 고려한 실험에서 측정한 singles rate와 doubles rate를 Ensslin이 제안한 식 (9)에 대입하여 얻은 중성자 증배 영향 결과이다. 또한 Fig. 16은 소결체 시료의 무게에 따른 multiplication을 나타낸 그림이다. 첫 번째 실험과는 달리 두 번째 실험에서는 질량이 증가함에 따라 multiplication이 증가하고 있음을 볼 수 있다. 그러나 소결체들이 element를 이루어 서로 떨어져 있기 때문에 multiplication 효과는 크게 나타나지 않았다.

Table 7 Measurement data and result of sintered pellet elements obtained from DSNC measurement

Mass(g)	Singles	Doubles	D/S	Gamma	A	B	C	M_L
6.22	228.143	17.812	0.0781	1.0251	3.0903	-2.0903	-1.0251	1.0061
15.45	562.014	44.086	0.0784	1.0299	3.0903	-2.0903	-1.0299	1.0073
25.68	927.838	73.236	0.0789	1.0364	3.0903	-2.0903	-1.0364	1.0088
45.72	1666.746	131.715	0.0790	1.0376	3.0903	-2.0903	-1.0376	1.0091
97.84	3576.880	283.130	0.0792	1.0393	3.0903	-2.0903	-1.0393	1.0095
149.43	5425.840	428.571	0.0790	1.0371	3.0903	-2.0903	-1.0371	1.0090
251.68	9435.699	753.692	0.0799	1.0488	3.0903	-2.0903	-1.0488	1.0118
409.05	14924.581	1193.336	0.0800	1.0498	3.0903	-2.0903	-1.0498	1.0121

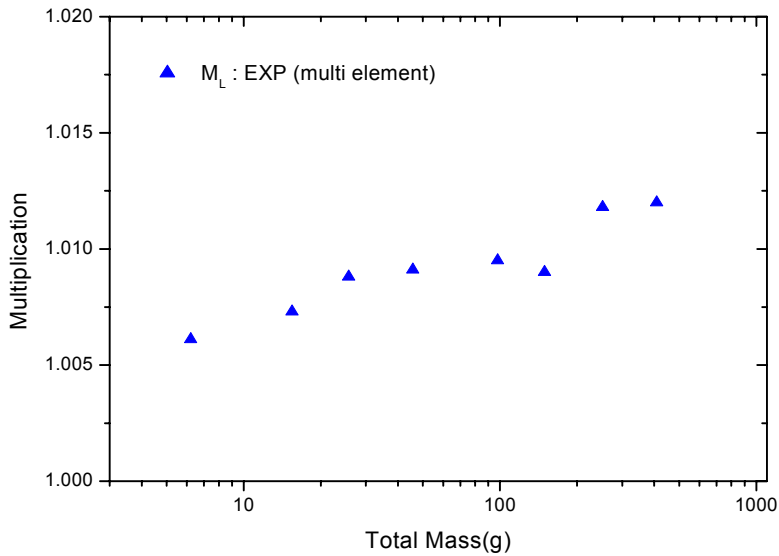


Fig. 16 Leakage multiplication as a function of total mass for sintered pellet elements obtained from DSNC measurement

4.2 MCNP Code 계산

본 실험에서 사용한 용기의 geometry와 첫 번째 실험에서 가정된 Fig. 13의 MCNP code 모델의 geometry는 동일하다. 그러므로 여기서의 MCNP code 계산 결과는 Fig. 13에 대한 MCNP code 계산 결과와 동일하다.

DSNC는 DUPIC 공정중의 분말시료, DUPIC 핵연료봉, 잔유물 뿐만 아니라 DUPIC bundle까지도 측정할 수 있는 장비이나 DUPIC bundle의 질량인 20kg만큼의 시료의 양이 확보되지 않았다. 그러므로 DUPIC bundle의 multiplication을 미리 알아보기 위해 DUPIC bundle의 geometry를 사용하여 300g부터 20kg까지 질량을 증가시켜 MCNP code 계산을 수행하였다.

Fig. 17은 MCNP code 계산에 사용된 DUPIC bundle의 geometry를 나타낸 것이다. DUPIC bundle은 48개의 element로 이루어져 있고 길이는 50cm이며 무게는 20kg

이다. MCNP code로 계산된 DUPIC bundle의 multiplication은 Table 8에 나타내었고 20kg인 경우 1.02736이다.

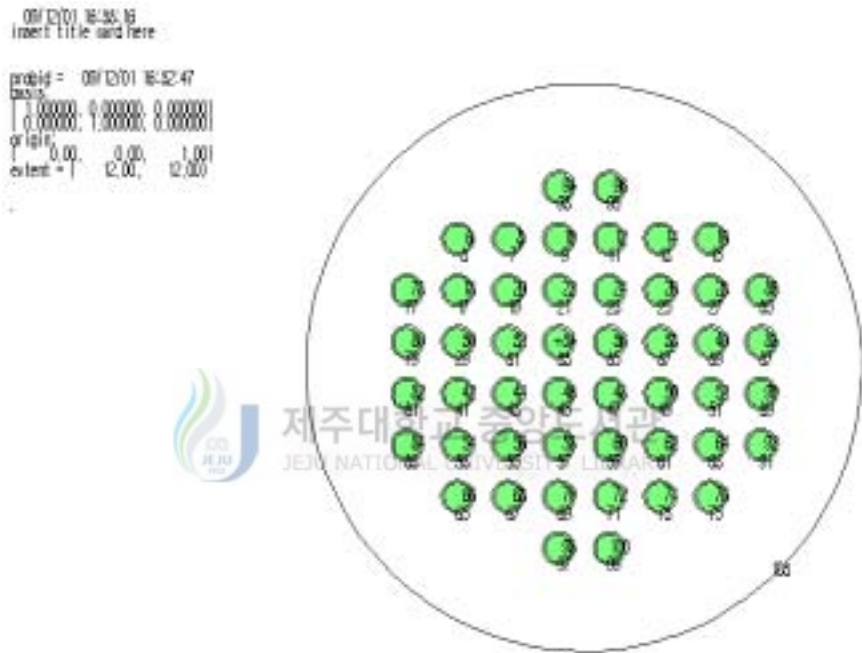


Fig. 17 Geometry of DUPIC bundle

Table 8 Result of sintered pellet elements obtained from MCNP calculation

Mass(g)	k_{eff}	M	P	P_{total}	M_L
304.18	0.01837	1.01871	0.99162	1.0004	1.011086
354.87	0.01913	1.01950	0.99112	1.0006	1.011562
405.57	0.01976	1.02016	0.99088	1.0007	1.012068
456.26	0.02042	1.02085	0.99055	1.0004	1.012109
2000.00	0.02094	1.02139	0.99035	1.0007	1.012746
5000.00	0.02826	1.02908	0.98702	1.0009	1.017147
10000.00	0.03588	1.03722	0.98338	1.0010	1.021507
15000.00	0.04185	1.04368	0.98029	1.0011	1.024745
20000.00	0.04634	1.04859	0.97809	1.0012	1.027361

4.3 직접측정과 MCNP Code 계산의 비교

Fig. 18의 그래프 ①은 직접측정법과 MCNP code 계산을 통해 도출된 multiplication값을 비교한 그래프이다. 또한 Fig. 18의 그래프 ②는 DUPIC bundle의 multiplication을 MCNP code로 계산한 그래프이다. 그림에서 보는 바와 같이 시료의 geometry를 잘 알고 있는 경우, 측정값과 MCNP code값이 매우 일치함을 볼 수 있다. 따라서, 시료를 측정하기 전에 시료의 구성과 geometry를 알고 있는 경우 시료의 multiplication은 MCNP code로 예측할 수 있다.

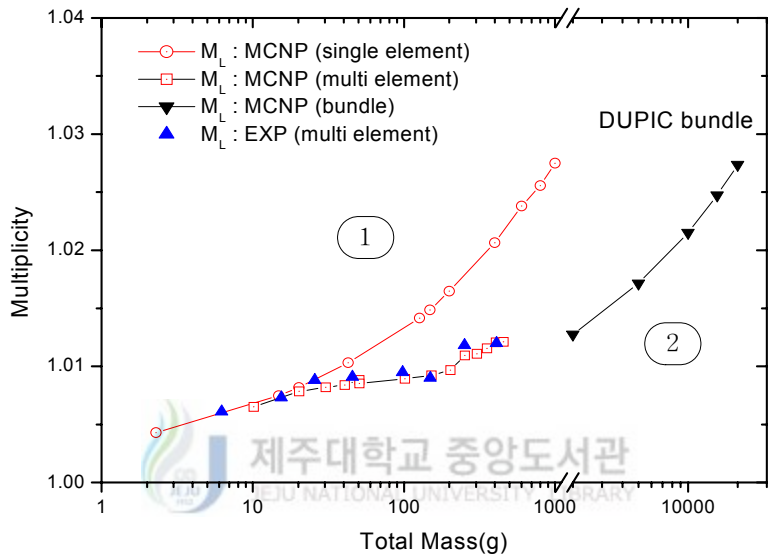


Fig. 18 Leakage multiplication for sintered pellets and DUPIC bundle obtained from MCNP calculation and DSNC measurement

V. 결 론

본 논문에서는 비파괴적인 방법으로 사용후핵연료내의 핵물질을 측정하는 경우에 유도핵분열에 의해 발생하는 중성자 증배효과를 분석하였다. 이를 위하여 Ensslin이 제안한 직접 측정방법과 MCNP code를 이용하는 방법을 사용하여 분석한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 직접측정방법에 의해서 중성자 증배효과를 분석한 결과 사용후핵연료 공정물질에서 유도핵분열에 의한 중성자 방출을 확인하였으며, 측정된 leakage multiplication은 공정 시료의 질량이 6.22g일 때 1.0061에서 시료의 질량이 409.05g일 때 1.0121사이의 값을 가지는 것으로 나타났다.
- leakage multiplication은 공정 시료의 밀도가 증가할수록 그리고 공정시료의 질량이 클수록 증가하는 것으로 나타났다.
- MCNP code에 의한 leakage multiplication값은 시료의 질량이 10.14일 때 1.006504에서 시료의 질량이 456.26g일 때 1.012109사이의 값을 가지는 것으로 나타났다.
- 직접측정에 의한 값과 MCNP code 값을 비교한 결과 상대오차가 0.007~0.080% 사이로서 거의 일치함을 볼 수 있었다. 그러므로 시료의 구성과 geometry를 알고 있을 경우 직접 측정을 하지 않더라도 Monte Carlo방법으로 얻은 보정곡선을 통해 미지시료의 leakage multiplication을 보정할 수 있는 것으로 판단되었다.

본 연구에서 도출된 중성자 증배 보정 곡선은 향후 우물형 중성자 계측기를 이용한 사용후핵연료 소결체에서의 핵물질 측정시 측정 오차의 감소에 기여할 수 있는 것으로 기대된다.

참고문헌

Briesmeister J. F., 2000, MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code LA-13709-M, Version 4C , LANL

Cifarelli D. M. and Hage W., 1986, Models for a Three-Parameter Analysis of Neutron Signal Correlation Measurements for Fissile Material Assay, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research vol.A251 pp.550-663, North-Holland, Amsterdam

Croff A. G., 1980, A User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code, ORNL/TM-7175, Oak Ridge National Laboratory, July

Degweker S. B., Srinivasan M. and Panchal C. G., 1990, An Improved Technique For Passive Neutron Assay Through the Use of Extendable Dead Time and Higher Moments Analysis, JNMM, pp.38-46

Dodaro A., Frazzoli F. V. and Remetti R., 1998, Passive Neutron Assay of Plutonium Materials: Monte Carlo Procedures to Simulate Generation of Neutron Pulse Trains and the Application of the Neutron Coincidence Counting Method, Nuclear Science and Engineering vol.130, pp.141-152

Ensslin N., 1985, A Simple Self-Multiplication Correction for In-Plant Use, Proc. of the ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management

Ensslin N., 1991, Chapter 16, Principles of Neutron Coincidence Counting, in Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials, edited by T. D. Reilly, N.

Ensslin, and H. A. Smith, US Nuclear Regulatory Commission NUREG/CR-5550

Ensslin N. et al, 1979, Self-Multiplication Correction Factors for Neutron Coincidence Counting", Nucl. Materials Management, vol.8, p.60

Ensslin N. et al., 1990, Assay Variance as a Figure of Merit for Neutron Multiplicity Counter, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research vol.A290 pp.197-207 , North-Holland, Amsterdam

Ensslin N., Evans M. L., Menlove H. O. and Swansen J. E., 1978, Neutron Coincidence Counters for Plutonium Measurements, INMM Journal, vol.VII, No. 2

Ensslin N. and McElroy R., 2000, Standard Test Method for Nondestructive Assay of Plutonium by Passive Neutron Multiplicity Counting, LA-UR-00-4788, LANL



Harmon C. D. II, Busch R. D., Briesmeister J. F. and Forster R. A., 1993, Criticality Calculations with MCNP, A Primer, Nuclear Criticality Safety Group, University of New Mexico, Los Alamos National Laboratory

Krick M. S., 1980, Neutron Multiplication Corrections for Passive Thermal Neutron Well Counters, Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8460-MS

Krick M. S. and Swansen J. E., 1984, Neutron Multiplicity and Multiplication Measurements, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, vol.219 pp.384-393, North-Holland, Amsterdam

Menlove H. O. et al., 1999, The Calibration of the DSNC for the Measurement of Cm-244 and Plutonium, LA-UR-99-6217, LANL

Pedersen B. et al., 1991, Neutron Multiple Correlation Analysis Method Applied to the Assay of Radioactive Waste, Proc. of 31th ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management pp.467-472

김호동 외, 1999, DUPIC 핵물질 안전조치 기술개발, KAERI/RR-2016/99, 한국원자력연구소

김호동 외, 2000, 핵물질 안전조치 기술과 관련 장비(번역서), KAERI/TS-126/2000, 한국원자력연구소

노규홍, 1999, MCNP Tutorials and Samples, KAERI/TR-1219/99

노성기, 1987, 미국 로스알라모스 국립연구소 방문 출장보고서 (핵물질 비파괴시험분석 기술 과정참여), KARTI/OR-66/87, 한국원자력연구소

이영길 외, 1996, 중성자검출법에 의한 핵물질 보장조치 기술, KAERI/OT-295/96, 한국원자력연구소

이영길 외, 1999, DUPIC 핵물질 안전조치용 중성자 검출장치 개발, KAERI/TR-1381/99, 한국원자력연구소

정미영 외, 1996, 핵물질계량관리 및 비파괴분석 관련 LANL 기술훈련 보고, KAERI/OT-318/96, 한국원자력연구소

차홍렬 외, 2000, DUPIC 핵물질 계량관리를 위한 DSNC의 교정 및 IAEA 인증시험, KAERI/TR- 1477/2000, 한국원자력연구소

감사의 글

본 논문을 완성하기까지 세심한 배려와 관심으로 지도해주신 박재우 교수님께 존경과 감사를 드립니다. 또한 언제나 따끔한 충고와 가르침을 주신 이윤준 교수님, 이현주 교수님, 천원기 교수님, 김신 교수님께도 깊은 감사를 드립니다.

지난 2년동안 논문을 완성하는데 많은 도움과 격려를 주신 한국원자력연구소의 양명승 부장님, 김호동 박사님, 고원일 박사님, 강희영 박사님, 이상윤 박사님, 하장호 박사님, 송대용 선생님을 비롯하여 DUPIC에 계신 모든 분들께 감사를 드립니다.

연구소 생활에 많은 도움을 준 미경언니와 항상 아침밥을 챙겨준 정현언니에게도 고마움을 표합니다. 기숙사에서 항상 즐겁게 해준 경남, 현주, 민정, 난주, 지원언니에게도 고마운 마음을 전합니다.

바쁜 와중에도 많은 도움을 주신 장시영 박사님, 나원우 선배님, 김동완 선배님, 김정훈 선배님에게도 감사의 말을 전합니다.

대학원 시절을 같이 보내며 서로를 위로하며 격려해준 영동, 성택, 상훈선배님에게도 진심어린 감사를 드리며, 학위과정 중 관심을 기울여주셨던 현종관, 박숙희 조교 선생님께도 감사의 말을 전합니다. 사소한 부탁도 서슴없이 들어준 준호, 보안, 상범, 지훈, 정선선배님께 감사를 드리고 힘들고 어려울 때 항상 버팀목이 되어준 용철선배님에게도 진심으로 감사의 말을 전합니다.

언제나 변함없이 제 옆에서 힘이 되어준 제로하나 친구들 희철, 승철, 승일, 용숙, 지숙, 혜정, 인혁, 원호, 미경, 성미에게도 고마움을 표합니다.

항상 저를 믿고 감싸주신 부모님께 무한한 존경과 사랑을 표하며, 동생 지은이와 군생활로 고생하고 있는 성훈이에게도 고맙다는 말을 전하고 싶습니다.

마지막으로 저를 도와주시고 격려해주신 모든 분들께 본 논문을 무사히 마치게 됨을 감사드리며 이 논문을 드립니다.