

사용후핵연료 연소도별 제조된 표준물질 특성 평가

박근일, 류호진, 엄성호, 이도연, 이정원
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
ngipark@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 내에 존재하는 민감 핵물질의 계량을 위한 비파괴분석법 중 듀픽 핵연료의 핵물질 계측용으로 개발되었던 DSNC (DUPIC Safeguards Neutron Counter)는 사용후핵연료 내에 존재하는 Cm이 방출하는 중성자를 계수한 후 ORIGEN 코드로 계산된 U/Cm 비율 및 Pu/Cm 비율을 이용하여 U 및 Pu 함량을 계산하는 방식이다. 그러나 사용후핵연료는 핵연료 표면의 연소도가 급격히 증가하는 특성을 가지고 있기 때문에 소결체 반경 방향의 핵물질 분포가 연소도에 따라 변화하게 된다. 따라서 중성자 계측기를 보정하기 위하여 길이 방향으로 연소도가 일정한 실제 사용후핵연료봉을 이용한 표준물질 (Reference Material)이 필요하며, 표준물질 자격 요건들은 시료 내의 화학 조성의 균일도와 밀접한 연관성이 있다. 따라서 건식 재가공 공정을 통해 제조된 사용후핵연료 표준물질은 분말화와 혼합공정 및 소결 공정을 거치게 되므로 전체적으로 균질한 화학조성을 가질 것으로 기대할 수 있으며, 사용후핵연료 내의 화학성분들이 균일하게 분포한다면 핵분열생성물들도 균일하게 분포하게 될 것이다.

본 연구에서는 연소도 범위 27 ~ 65 GWd/tU의 실제 사용후핵연료를 이용하여, 단일 연소도 및 연소도 혼합된 분말형 표준물질과 펠렛형 표준물질을 제조하고, 중성자 방출 및 화학적 특성을 평가하였다.

2. 분말형 표준물질 특성 분석

분말형 사용후핵연료 표준물질은 평균연소도 27, 35, 58, 65 GWd/tU 인 연료봉에서 연소도가 균일한 부분을 절단하여 사용하며, DDFD 핫셀에서 OREOX용 산화물을 사용하여 500°C, 10시간동안 산화시켜 분말을 혼합하여 제조하였다. 아울러 기준 사용후핵연료로 선정된 초기농축도 4.0%, 방출 연소도 45 GWd/tU, 냉각기간 10년 조건에 해당하는 Cm을 함유하도록 저/고연소도 사용후핵연료가 혼합된 분말형 표준물질을 제조하였다. 균일도를 평가하기 위하여 분말 혼합 공정을 거친 후 10g 샘플을 10개씩 채취하여 DSNC로 중성자 선량을 측정하였으며, 각 시편별로 샘플 간 측정에 의한 표준편차를 평균하면 5.0이 되어 시편 내에서의 연소도 혼합은 불확도 5% 수준으로 균일하게 혼합되었음을 확인하였다.

그림 1은 사용후핵연료 연소도별 핵분열성물질 함량을 ORIGEN 코드를 이용하여 계산한 결과로, 사용후핵연료별로 초기 농축도, 연소이력, 냉각기간이 모두 다르기 때문에 연소도별로 일반적인 변화 경향을 도출하기에는 무리가 있으나 전체적인 경향을 비교하여 볼 때 Cm 함량의 경우 연소도가 증가함에 따라 급격히 증가하는 경향이 나타난다. 그림 2는 연소도별로 제조된 분말형 표준물질의 DSNC 측정 결과로서, 연소도에 따른 Cm 함량과 중성자 선량과의 관계를 도식하였다. 그림 3은 저/고연소도 사용후핵연료 혼합 분말의 중성자 선량을 DSNC를 사용하여 측정한 결과로서, 혼합 종류별 DSNC 측정 선량의 차이는 큰 것으로 나타났는데 이는 각 ORIGEN 코드 계산에 사용된 사용후핵연료 연소도의 오차와 ORIGEN 코드 계산의 오차 등에 기인하여 정확한 Cm 함유량을 알 수 없는데에서 기인한다. 즉 표 1에서 보는 바와 같이, 사용후핵연료 봉에 따라 핵연료봉의 감마선 분석과 건식 재가공 분말의 Nd-148 화학분석에 의한 연소도 차이를 보여주고 있어, 연소도에 대한 보다 정확한 분석이 요구된다.

3. 펠렛형 표준물질 특성 분석

균일하게 혼합한 분말을 이용하여 평균연소도 27, 35, 65 GWd/tU 연소도인 펠렛형 표준물질을 제조하였다. 그림 4는 펠렛형 표준물질내 Cm 함량 변화에 따른 DSNC 측정 결과를 적용한 연소도 값 변화에 따라 도식한 결과로서, Cm 함량 계산시 적용한 연소도는 표 1에 제시된 비파괴법에 의한 연소도와 표준물질 이용하여 교정한 경우로 나누었다. 그림에서와 같이 균일하게 분말을 혼합하여 구한 연소도를 적용한 경우와 기존 연소도 측정방법에 의한 결과가 연소도가 증가할수록 중성자 방출 계산값이 큰 차이가 난다는 것을 알 수 있었다.

사 사

본 연구는 교육과학기술부의 원자력 연구개발 중장기 계획사업의 일환으로 수행되었습니다.

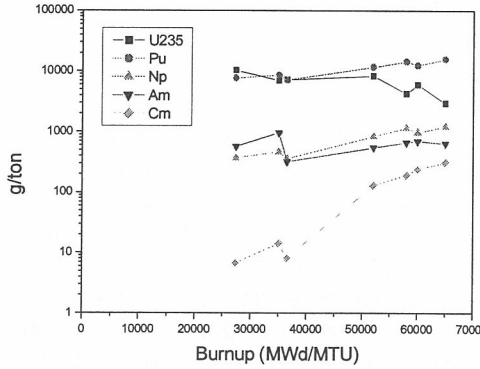


그림 1. 사용후핵연료 연소도에 따른 U-235, Pu, Np, Am, Cm 함량의 변화

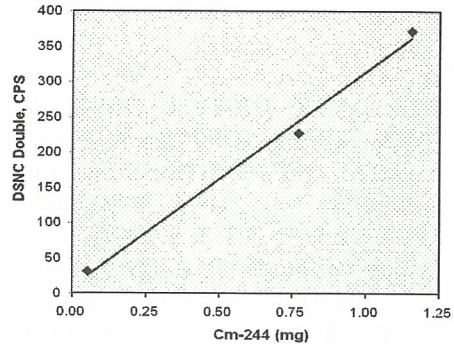


그림 2. 연소도에 따른 분말형 표준물질내 Cm-244 함량과 DSNC 측정량 변화

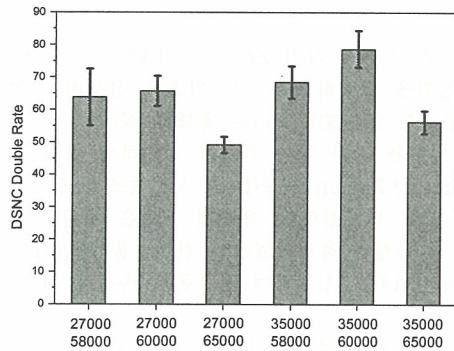


그림 3. 연소도 혼합 분말형 표준물질의 DSNC 측정 double rate 비교

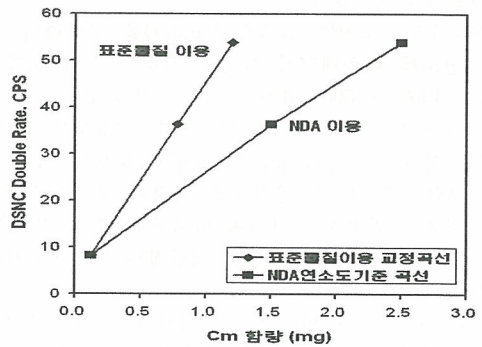


그림 4. 연소도 기준 변화에 따른 펠렛형 표준물질 내 Cm 함량과 DSNC 측정량 변화

표 1. 감마선분석과 Nd-148 화학분석에 의한 연소도 차이

사용후핵연료봉	Gamma-ray 연소도 (GWd/t)	Nd-148 화학분석연소도(GWd/t)	차이
G23-K10A	35	33	6%
G23-B16	58	51	14%
K23-M03	65	57	14%