

잔류 핵분열생성기체의 정량적 추출을 위한 조사핵연료 조각 시료의 불활성기체용해평가

박순달, 김정석, 하영경, 송규석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 대덕대로 1045

nsdpark@kaeri.re.kr

1. 서론

조사핵연료 내 핵분열생성기체의 잔류거동에 관한 정량적 평가를 위해서는 조사핵연료를 완전히 용해하고 이때 방출되는 기체를 정량적으로 포집, 측정해야 한다. 조사핵연료와 같은 고방사성 시료는 핫셀에서 원격 취급해야 하며 실험 후 발생하는 폐기물의 처리 등을 고려하여 실험을 계획해야 한다[1]. 이와 같은 고방사성 시료 취급의 특성을 고려하여 조사핵연료 내 잔류 핵분열생성기체 측정을 위한 시료 용해법으로 산을 사용하지 않은 불활성기체용해법을 개발하였다[2]. 이 방법은 상용 원소분석기의 전극로를 이용할 수 있는 장점이 있으며, 시료 용해시 부식성 off gas 발생이 없고, UO_2 소결체를 2-3분 이내에 어떤 합금 형태로 완전히 용해할 수 있는 장점이 있다.

본 연구에서는 고연소 핵연료봉의 임의 위치에서 채취한 조사핵연료 조각 시료를 금속조연체와 함께 용해하고 그 용해상태를 평가하였다.

2. 본론

2.1 조사핵연료 용해

집합체 운전연소도 약 56 GWd/tU의 조사핵연료봉 임의 위치에서 조사핵연료 조각 시료를 취하였다. 시편의 용해에는 조사피복관의 수소분석을 위해 핫셀에 설치되어 있는 전극로(LECO EF-500)를 이용하였다. 조사핵연료 조각 시료 약 0.05 g을 주석 1.0 g, 니켈 1.0 g과 함께 전극로 용해전류 850 A, 용해시간 120초, 유량 450 cc/min 헬륨분위기의 흑연 도가니에서 용해하였다. 이때 방출되는 기체를 기체포집병(1030.59Cm³)에 120초간 포집하여 포집기체량, 잔류 핵분열생성기체의 조성 및 동위원소 분포를 측정하고 조사핵연료 내 잔류 핵분열생성기체 농도를 계산하였다.

2.2 용해물의 미세분석

조사핵연료 용해 후 생성된 용해물을 회수하여 에폭시 수지로 마운팅 하고 시편 표면을 거울상으로 연마하였다. 용해물의 용해상태 평가에는 고방사성 시료의 미세분석이 가능한 차폐형전자탐침미세분석기(Shielded Electron Probe Micro Analyzer(EPMA) CAMECA XR-50R)를 사용하였다. 이 장비는 챔버 내에 방사성 시료가 존재할 때 고에너지 감마선으로부터 기기 및 운전자를 보호할 수 있도록 장치되어 있다.

이 장비를 이용하여 용해물의 Backscattering electron image(BEI), U, Ni, Sn의 elemental mapping 및 line scan profile(LSP)을 측정하였다. 또한 용해물의 산소 함유 및 제논 잔류 여부를 확인 하였다.

2.3 용해물의 미세분석결과

연소도 약 56 GWd/tU인 조사핵연료 조각 시료 약 0.05 g을 주석 1.0 g, 니켈 1.0 g과 함께 헬륨분위기의 흑연도가니에서 850 A로 120초간 용해 후 생성된 용해물은 그림 1과 같이 작은 단추 모양으로 흑연도가니 내에 분리되어 있었다.

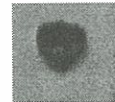


Fig. 1. A melt of an irradiated oxide fuel fragment, which was fused with 1.0 g tin and 1.0 g nickel fluxes at 850 A for 120 seconds.

그림 2는 용해물의 backscattering electron image(BEI) 및 U, Ni, Sn의 원소분포 사진이다. 용해물의 secondary electron image(SEI)를 관찰한 결과 전형적인 equi-axial polygonal 모양의 UO_2 결정립이 발견되지 않았으며 SEI가 선명하지 못해 조직관찰이 용이하지 않았다. 이것은 용해물이 고방사성이며 UO_2 결정립 같은 선명한 결정상이 존재하지 않기 때문일 것이다. 따라서 BEI로 용해물의 모양을 관찰하였다. 그림 2에서 보는 바와 같이 Ni, Sn은 전체적으로 균일하게 분포되어 있지만 U는 편석되어 있

음을 알 수 있다.

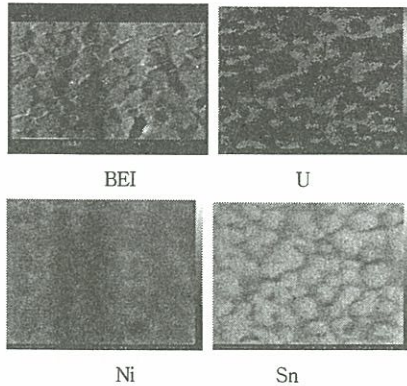


Fig. 2. A backscattering electron image(BEI) and elemental mapping images of U, Ni, and Sn for the melt.

그림 3은 용해물의 임의 위치의 3737 μm 범위에 대한 산소의 line scan profile 결과이다. 그림 3에서 보는 바와 같이 용해물에서 산소가 검출되지 않음을 알 수 있다.

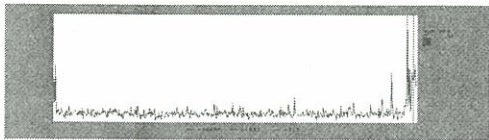


Fig. 3. Oxygen line scan profile over 3737 μm of the melt.

그림 4는 용해물 임의 위치의 4000배 BEI 사진이다. 그림 4에서 보는 바와 같이 높은 배율에서도 UO_2 소결체의 전형적인 equi-axied poly diagonal 모양의 결정립을 확인 할 수 없다. 따라서 UO_2 의 산소가 후연도가니의 탄소와 고온의 불활성기체분위기에서 반응하여 CO 로 휘발되었을 것으로 추정된다.

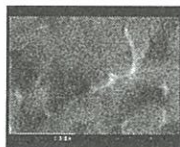


Fig. 4. Backscattering electron image(BEI) of the melt at magnification of 4000.

그림 5는 용해물 임의 위치의 37 μm 범위에 대한 BEI 사진 및 Ni, Sn, U의 line scan profile(LSP) 분석결과이다. 그림 5에서 보는 바

와 같이 U은 매우 분산된 편석 현상을 보이며 U 농도가 높은 곳에서 Sn의 농도가 감소되는 것으로 나타났다. 그러나 Ni의 농도는 영향을 받지 않은 것으로 보인다. 이것은 U의 함량이 낮은 원인이 있겠지만 UO_2 , Ni, Sn이 고온에서 어떤 기계적인 교반 없이 짧은 시간 용해되었기 때문인 것으로 생각된다.

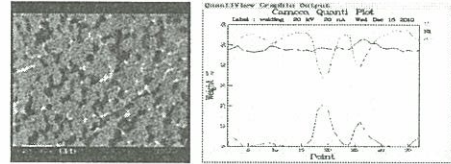


Fig. 5. Line scan profile(LSP) over 37 μm of the melt.

3. 결론

조사핵연료 조각 시료를 과잉의 금속 조연제와 함께 850 A(약 2600-2800 $^{\circ}\text{C}$)에서 120초간 용해한 결과 UO_2 소결체가 U-Ni-Sn의 intermetallic alloy 형태로 깨끗하게 용해되었으며 이때 잔류 핵분열기체가 완전히 추출된 것으로 확인되었다.

4. 감사의 글

이 논문은 교육과학기술부의 재원으로 시행하는 한국과학재단의 원자력기술개발사업으로 지원 받았습니니다.

5. 참고문헌

- [1] S. D. Park, Y. S. Park, J. G. Kim, Y-K. Ha, K. Song, Fabrication and installation of radiation shielded spent fuel fusion system KAERI/TR-4008/2010, 2010.
- [2] S. D. Park, Y. S. Park, H. K. Ha, K. Song, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, DOI:10.1007/S10967-011-1047-5. 2011.