

감마선분광분석을 이용한 조사 TRISO 핵연료 내 방사성핵종 정량

강병만*, 김정석, 최광순, 김영복, 박재일, 하영경

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*bkang@kaeri.re.kr

1. 서론

초고온 원자로에 사용되는 TRISO (tristructural-isotropic) 핵연료는 구형의 미립자로, 산화 우라늄 (UO_2)을 중심으로 4개의 균일한 피복층을 포함하고 있다[1]. 이러한 피복층은 핵연료커널 (UO_2 fuel kernel)과 접한 다공성 탄소층을 시작으로, 고밀도 열분해 탄소층 (IPyC), 탄화규소 (SiC) 세라믹층, 그리고 추가적인 고밀도 열분해 탄소층 (OPyC)의 순서로 구성되어 있다. 다중 피복층은 높은 온도의 TRISO 핵연료 연소 과정에서 발생하는 핵분열 생성물의 방출을 억제하는 1차 장벽 역할을 수행할 뿐 아니라 핵연료 입자 자체의 구조적인 안정성을 제공하는 특징을 가지고 있다. 특히 입자 핵연료의 닫힌 피복층 구조 내에서 나타나는 산소 원자와 희토류 원소와의 촉발된 결합은 확산성이 없는 희토류 산화물의 생성을 야기해 피복층 외부로의 누출을 억제한다[2]. 또한 산화물을 생성하지 않는 핵분열 원소들의 경우에는 고밀도의 탄화규소 방어벽에 막혀 확산이 저지된다. 그러나 위와 같은 장점에도 불구하고 팔라듐 (Pd)과 같은 일부 생성물은 탄화규소와의 화학적 상호작용을 통해 탄화규소의 부식을 유도하고 이로 인해 피복층이 얇아지는 현상을 보인다[3]. 이러한 이유로 조사된 TRISO 핵연료의 연소도 측정과 더불어 파손에 대한 원인 분석을 위해 화학적 용해를 통한 방사성핵종의 분석이 필수적이다.

TRISO 핵연료의 화학적 조사후시험을 위해서는 조사 핵연료의 용해를 기초로 하는 성분원소의 분리 및 분석기술이 확립되어야 한다. 고밀도의 탄화규소 피복층을 포함하는 TRISO 핵연료를 기존의 질산 용해 조건으로 완전히 용해시킬 수 없으며 따라서 새로운 전처리 방안의 모색이 절대적으로 필요하다. 본 연구는 조사 TRISO 핵연료의 용해법 개발을 토대로 핵연료 특성 및 연소도에 대한 평가 원소로 이용될 수 있는 방사성핵종들의 정량화에 목적을 두고 있다.

2. 실험 및 결과

2.1 조사 TRISO 핵연료 내 커널 용해 및 시료준비

본 연구에 사용된 조사 TRISO 핵연료 (4.5wt% U-235 enrichment) 시료는 OPyC를 제외한 3개의 피복층을 가지고 있으며 (thickness of layer: porous carbon = 102.9 μm , IPyC = 40.6 μm , SiC = 36.1 μm) 총 147 mg을 사용하였다. 습식 용해법을 토대로 한 조사 핵연료 중의 방사성핵종 정량을 위한 전반적인 과정은 Fig. 1과 같다. 핵연료커널 용해는 원통형 마노 (agate)를 사용하여 SiC 세라믹층을 분쇄시키는 그라인딩 과정과 혼합산을 이용하여 심재 핵연료를 2 단계로 용해시키는 과정으로 이루어졌다. SiC가 주성분인 미량의 불용성 잔유물은 유리섬유 필터를 이용하여 분리하였다.

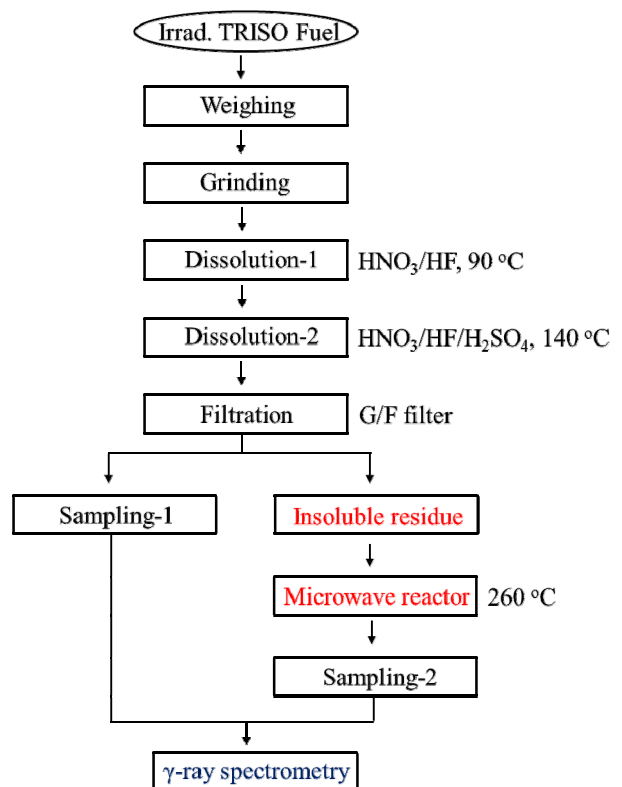


Fig. 1. Analytical processes for the determination of radionuclides in irradiated TRISO fuel.

2.2 불용성 잔유물의 용해

SiC 및 열분해 탄소 불용성 잔유물에 포함된 방사성핵종 분석을 위한 전처리로 혼합산 (HNO₃/HF/H₂SO₄) 매질하에서 마이크로파 반응기를 사용하였다. 불용성 성분의 완전한 용해를 위해 260°C의 고온 조건에서 2 시간 동안 반응을 진행하였으며 얻은 노란색의 균질한 용액을 얻을 수 있었다.

2.3 감마선분광분석에 의한 핵종분석

고방사성 조사 TRISO 핵연료 시료 중의 방사성 핵종 분석을 위하여 핵연료커널 및 잔유물 용해 용액 일정량을 각각 취하여 희석 후 계측용기에 담아 감마선분광분석을 수행하였다 (Table 1 및 Fig. 2). Table 1에서 보여주는 것처럼 8종의 주요 핵종이 검출되었으며, Cs-137, Ce-144 및 Ru-106이 높은 방사능을 보였다. 핵연료커널 용해용액에서 계측된 개별 핵종의 방사능은 잔유물을 포함한 전체 방사능의 96% 이상을 차지하였으며, 고밀도 SiC 피복층에 침투되어 화학적인 산침출만으로 회수되지 않는 감마선 핵종들의 양은 0.3 ~ 3.8%범위이었다.

Table 1. Distribution of gamma emitters in an irradiated TRISO fuel sample

Nuclide	Activity (Bq/g-sample)		
	Fuel kernel solution	Residue	Total
¹³⁴ Cs	1.74×10 ⁹ ± 4.72×10 ⁶	7.66×10 ⁶ ± 5.29×10 ⁴	1.75×10 ⁹ ± 4.72×10 ⁶
¹³⁷ Cs	6.22×10 ⁹ ± 1.03×10 ⁷	2.51×10 ⁷ ± 9.71×10 ⁴	6.25×10 ⁹ ± 1.03×10 ⁷
¹⁴⁴ Ce	2.73×10 ¹⁰ ± 4.72×10 ⁷	9.11×10 ⁷ ± 4.39×10 ⁵	2.74×10 ¹⁰ ± 4.72×10 ⁷
¹⁵⁴ Eu	1.18×10 ⁸ ± 6.00×10 ⁶	3.15×10 ⁵ ± 5.08×10 ⁴	1.18×10 ⁸ ± 6.00×10 ⁶
¹⁰⁶ Ru	6.80×10 ⁹ ± 5.14×10 ⁷	7.77×10 ⁷ ± 9.16×10 ⁵	6.88×10 ⁹ ± 5.14×10 ⁷
¹²⁵ Sb	2.81×10 ⁸ ± 1.54×10 ⁷	1.06×10 ⁷ ± 2.13×10 ⁵	2.92×10 ⁸ ± 1.54×10 ⁷
⁹⁵ Zr	1.83×10 ⁸ ± 5.57×10 ⁶	1.22×10 ⁶ ± 5.31×10 ⁴	1.85×10 ⁸ ± 5.57×10 ⁶
⁹⁵ Nb	3.78×10 ⁸ ± 3.21×10 ⁶	3.95×10 ⁶ ± 4.23×10 ⁴	3.82×10 ⁸ ± 3.22×10 ⁶

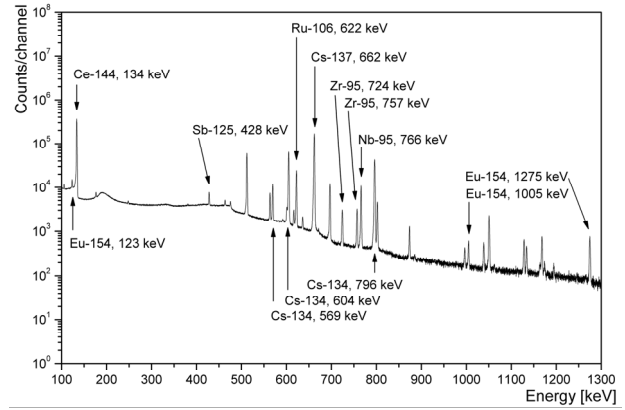


Fig. 2. Gamma spectrum of dissolved fuel kernel from an irradiated TRISO fuel.

3. 결론

본 연구에서는 2단계 용해법 (그라인딩을 수반한 산침출 및 마이크로파 반응)을 적용하여 조사 TRISO 핵연료를 효과적으로 용해하고 핵연료 중에 함유된 방사성핵종 (gamma emitters)을 정량할 수 있었다. TRISO 핵연료의 고밀도 피복층 분쇄 및 핵연료커널의 용해에 추가하여 마이크로파를 이용한 불용성 피복층에 대한 완전 용해를 수행함으로써 피복층에 침투된 방사성핵종에 대한 개별적인 정보를 확인할 수 있었다. 방사성핵종 분석결과들을 토대로 Cs-137 지표원소 및 방사능비 (¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 등)에 의한 상대적 연소도 산출이 가능할 것으로 기대한다. 본 연구를 통하여 준비한 핵연료커널 용해용액을 이용하여 Nd 지표원소를 이용한 연소도 측정, U, Pu 동위원소 분석 및 핵분열생성물 정량분석을 수행할 예정이다.

4. 참고문헌

- [1] J.J. Powers and B.D. Wirth, "A Review of TRISO Fuel Performance Models", Journal of Nuclear Materials, 405, 74-82 (2010).
- [2] Y. Katoh and A. Cozzi, "Ceramics in Nuclear Applications", John Wiley & Sons, Inc, Canada, 30, 193-202 (2009).
- [3] D. Petti and J. Maki, "The Challenges Associated with High Burnup and High Temperature for UO₂ TRISO-Coated Particle Fuel", MIT NNGP Symposium, INL/CON-05-00038 (2005).