

사용후핵연료 건식재가공에 의한 표준물질 제조 절차 및 균질도 평가

류호진, 박근일, 이정원, 조광훈, 이도연, 이태훈, 김호동, 송기찬

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

hiryu@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 내에 존재하는 민감 핵물질의 계량을 위해 비파괴분석법(Non-Destructive Assay, NDA)이 사용되고 있다. 건식 재가공 산화물 핵연료의 핵물질 계측용으로는 DSNC(DUPIC Safeguards Neutron Counter)가 개발되어 IMEF에 위치한 DFDF(DUPIC Fuel Development Facility)에 설치되어 사용되고 있다. 사용후핵연료는 중성자속의 분포 차이에 의해 핵연료 표면의 연소도가 급격히 증가하는 특성을 가지고 있으며 이로 인하여 소결체 반경 방향의 핵물질 분포가 연소도에 따라 변화하게 된다. 따라서 DSNC와 같은 중성자 계측기를 보정하기 위하여 실제 사용후핵연료를 사용하는 것은 많은 불확도를 내포하게 될 것이다. 한편, DUPIC 핵연료 개발과정에서 확립된 사용후핵연료 건식재가공 기술은 사용후핵연료를 반복 산화-환원 공정에 의해 미세한 분말로 변환시킨 후 다시 재소결하는 공정을 거치므로 균질한 표준물질을 제조할 수 있는 기술로 기대되고 있다. 따라서 본 연구에서는 사용후핵연료 내의 핵물질 계량의 신뢰도를 향상시킬 수 있을 것으로 기대되는 사용후핵연료 표준물질 제조 절차 및 균질도를 평가하고자 한다.

2. 기술 현황 분석

사용후핵연료 내의 핵물질 계량은 Fig. 1 과 같이 중성자 계수를 통해 Cm-244의 질량을 측정하고 화학분석을 통해 얻어지는 Pu, U 조성과 코드 계산을 통해 얻어지는 Pu/Cm, U/Cm 질량비를 이용해 Pu, U의 질량을 계산하게 된다. 따라서 Pu 및 U의 측정 불확도에는 중성자 계측기의 측정 불확도 외에 화학 분석의 측정 불확도와 코드 계산의 측정 불확도가 합성되게 될 것이다. 따라서 측정 불확도를 감소시키기 위해서 다음과 같은 자격을 가진 사용후핵연료의 표준물질이 필요하다. 첫째, 화학분석을 위한 샘플링 오차를 최소화하기 위해서는 표준시료의 구성이 균질해야 한다. 둘째, 코드 계산을 위해서는 표준시료의 정확한 물리적(밀도, 무게), 화학적(분자식) 명세가 있어야 한다. 셋째, 표준시료에 포함되어 있는 Cm-244 및 주요 핵분열성 악티나이드 원소들의 정확한 함유량 정보가 있어야 한다. 넷째, 교정곡선 생산을 위해 다양한 질량의 표준시료가 준비되어야 한다.

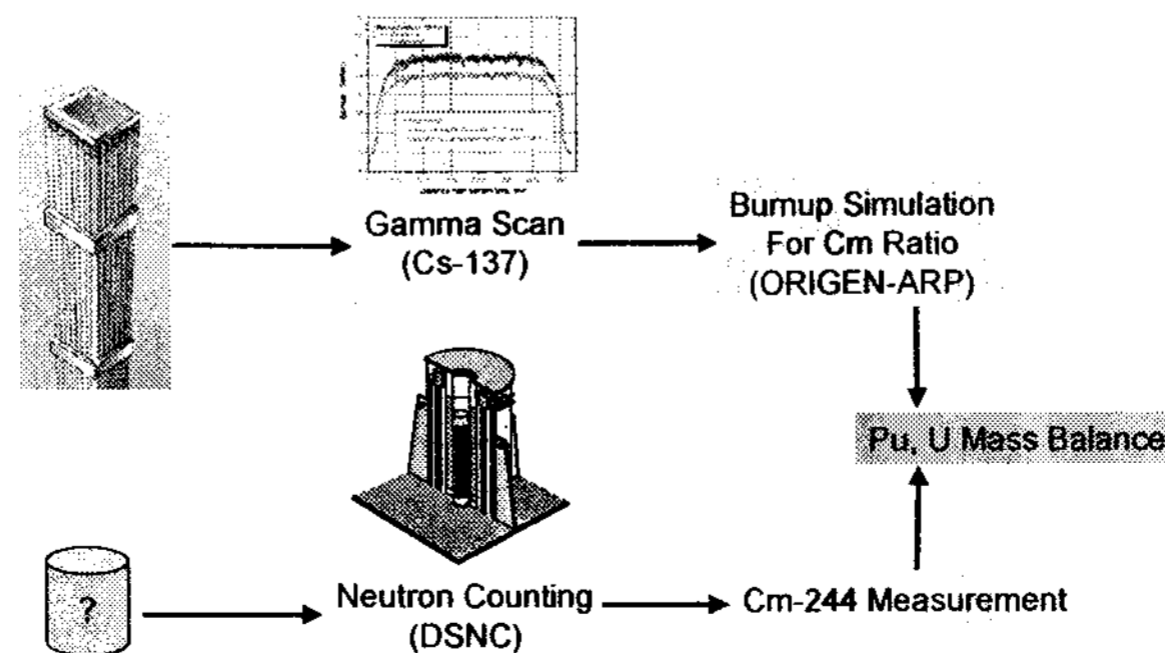


Fig. 1. Flow chart of NDA analysis of spent fuel

3. 사용후핵연료 표준물질 제조절차 및 균질도 평가

표준물질(Reference Material)은 의도된 목적에 맞도록 만들어진 특성치가 충분히 균질하고 안정적인 물질로서 측정 시스템 교정 및 품질 관리에 사용된다. 인증표준물질(Certified Reference Material)은 특성값과 관련된 불확도 및 소급성(traceability)이 언급된 인증서가 있는 표준물질이다. 품질관리물질(Quality Control Materials, QCM)은 품질관리를 위해 사용되는 표준물질로서, 대개 내부 사용을 목적으로 시험실에서 생산되는 내부표준물질(In-house Reference Material)이며 경향분석, 결과값 비교, 기기성능체크, 반복성 검토, 샘플체크 용으로 사용될 수 있다. 연소도별로 조성이 다양한 사용후핵연료를 이용한 표준물질은 품질관리물질이 적합한 개념일 것으로 판단된다. 현재 한국원자력연구원에서는 27GWd/t에서 65GWd/t 연소도 범위의 사용후핵연료를 보유하고 있으므로 Fig. 2와 같이 건식 재가공된 표준물질의 균질도를 평가한 후 중성자 계측 결과와 화학분석 결과 간의 상호 비교를 통해 핵물질 측정에 사용될 수 있는 교정 관계식을 수립할 수 있을 것으로 판단된다. Table 1은 27,300MWd/MTU의 연소도를 가지는 G23 핵연료 봉을 건식 재가공한 후 화학조성 분석을 반복 수행한 결과를 이용하여 측정 불확도를 평가한 결과이다. 미량 함유된 Pu-238을 제외한 나머지 핵종들은 4% 이내의 측정 불확도를 보이고 있음을 알 수 있었다. 이와 같은 측정 불확도 평가 방법은 사용후핵연료와 건식재가공 전환체의 화학 조성의 균질도를 비교하는 데 사용될 수 있을 것이다.

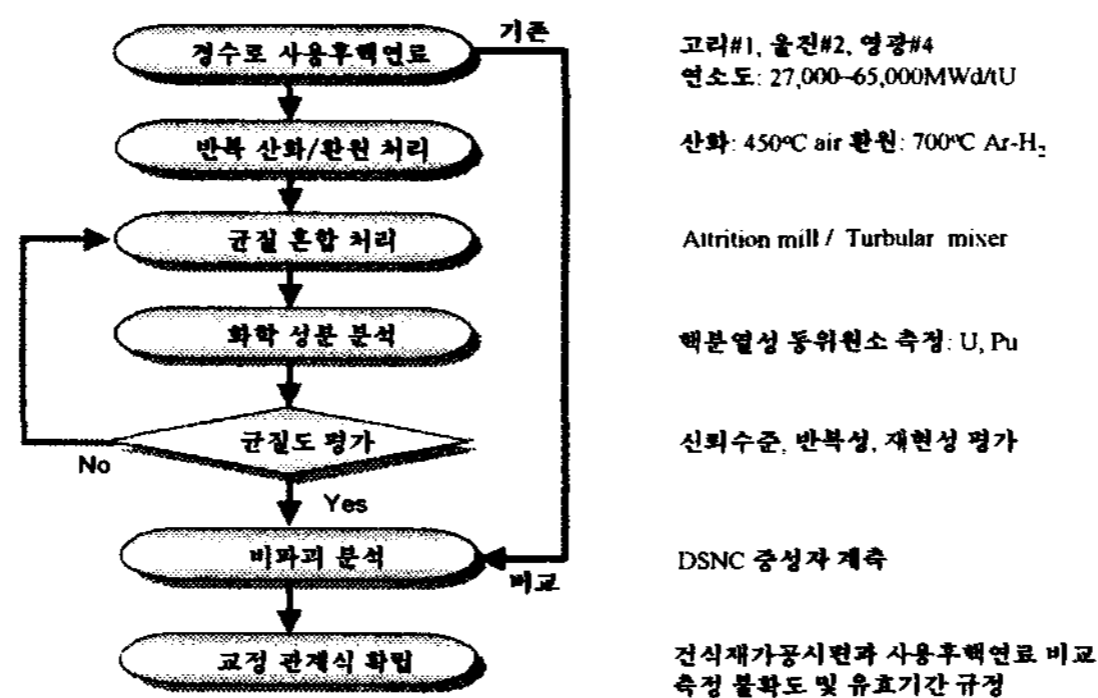


Fig. 2. Flow chart for fabrication of dry-processed spent fuel standard

Table 1. Uncertainty analysis of chemical composition of dry-processed pellet

Isotope	Average	Standard Deviation	standard uncertainty	Degree of freedom	Coverage Factor, k_{95}	expanded uncertainty	%
U	0.95165	0.01298	0.006482	3	3.18	0.020614	2.2
Pu	0.00833	0.00009	4.3E-05	3	3.18	0.000137	1.6
U-234	0.00018	0.00000	1.44E-06	3	3.18	4.59E-06	2.5
U-235	0.01030	0.00015	7.47E-05	3	3.18	0.000238	2.3
U-236	0.00353	0.00008	3.76E-05	3	3.18	0.00012	3.4
U-238	0.93764	0.01287	0.006434	3	3.18	0.020459	2.2
Pu-238	0.00016	0.00002	1.05E-05	3	3.18	3.35E-05	20.7
Pu-239	0.00523	0.00006	2.78E-05	3	3.18	8.83E-05	1.7
Pu-240	0.00200	0.00003	1.39E-05	3	3.18	4.42E-05	2.2
Pu-241	0.00055	0.00001	3.88E-06	3	3.18	1.24E-05	2.2
Pu-242	0.00039	0.00000	2.29E-06	3	3.18	7.27E-06	1.9

참고문헌

1. KS A ISO Guide 30, 2005
2. 측정불확도, 한국화학시험연구원
3. IAEA, Safeguards Techniques and Equipment, 2003