

사용후핵연료 건식재가공에 의한 표준물질의 제조성 분석

류호진, 조광훈, 이도연, 이철용, 박근일, 송기찬
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
hjryu@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 내에 존재하는 민감 핵물질의 계량을 위한 비파괴분석법 중 DUPIC 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 방식으로 핵물질을 계량하고 있다. 사용후핵연료에 존재하는 Cm이 방출하는 중성자를 정확히 계수하기 위해서는 Cf-252와 같은 중성자 표준선원에 의해 DSNC를 교정하는 작업이 선행되어야 한다. 그러나 다양한 함량과 형태를 가지는 중성자 표준선원을 보유하는 것은 현실적으로 용이하지 않아 교정의 신뢰도를 향상시키는데 한계가 되고 있다. 따라서 화학분석에 의해 악티나이드 원소들의 조성이 알려진 사용후핵연료 rodcut 자체를 중성자 계측의 표준물질로 사용하고자 하는 연구가 시도되고 있다. 사용후핵연료는 핵연료 표면의 연소도가 급격히 증가하는 특성을 가지고 있기 때문에 소결체 반경 방향의 핵물질 분포가 연소도에 따라 변화하게 된다. 따라서 DSNC와 같은 중성자 계측기를 보정하기 위하여 실제 사용후핵연료 rodcut을 사용하기 위해서는 길이방향으로 연소도가 일정한 사용후핵연료 연료봉을 선택한 후 반경 방향으로 일부가 아닌 전체를 포함하는 슬라이스에 대한 화학 분석을 수행하여야 할 것이다. 한편, DUPIC 핵연료 개발과정에서 확립된 사용후핵연료 건식재가공 기술은 사용후핵연료를 산화-환원 공정에 의해 미세한 분말로 변환시킨 후 혼합하고 다시 소결하는 공정을 거치므로 균질한 표준물질을 제조할 수 있는 기술로 기대된다. 따라서 본 연구에서는 건식 재가공 기술을 이용하여 균질한 사용후핵연료 표준물질의 제조하는 절차에 대한 분석을 수행하였다.

2. 표준물질 자격 요건 분석

사용후핵연료 표준물질이 지니고 있어야 하는 기본 자격 요건은 다음과 같이 수립된 바 있다. 첫째, 화학분석을 위한 샘플링 오차를 최소화하기 위해서는 표준시료의 구성이 균질해야 한다. 둘째, 코드 계산을 위해서는 표준시료의 정확한 물리적, 화학적 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. 이러한 자격 요건들은 시료 내의 화학 조성의 균질도와 밀접한 연관성이 있음을 알 수 있다. 표준물질로 사용될 시료 내에서 위치별로 화학 조성이 균질하지 않다면, 특정 부위를 측정된 조성 값이 표준물질로 사용될 시료를 대표하는 값이라는 것을 보증할 수 없기 때문이다. 사용후핵연료 rodcut을 직접 표준물질로 사용하는 방법은 길이방향으로의 연소도가 일정하다는 가정을 바탕으로 하고 있기에 길이방향으로 화학성분의 균질도를 먼저 검증하는 것을 필요로 한다. 또한 소결체 전체 단면을 분석해야 하기 때문에 방사능 시료 취급 부담이 가중될 수 있다. 그러나 건식 재가공 공정을 통해 제조된 사용후핵연료 표준물질은 분말화와 혼합공정 및 소결 공정을 거치게 되므로 전체적으로 균질한 화학조성을 가질 것으로 기대할 수 있다. 또한 ASTM 등을 통해 표준화된 샘플링 방법을 사용한다면 측정된 화학조성이 남아있는 표준물질의 화학조성을 대표하는 값으로 인정받을 수 있다.

3. 사용후핵연료 표준물질 균질도 평가 방법

표준물질(Reference Material)은 의도된 목적에 맞도록 만들어진 특성치가 충분히 균질하고 안정적인 물질이다. 현재 한국원자력연구원에서는 27GWd/t에서 65GWd/t 연소도 범위의 사용후핵연료를 보유하고 있으며 저연소도 및 고연소도 사용후핵연료에 대한 건식 재가공 기술을 확립한 바 있다. 균질도의 평가를 위해서는 건식 재가공된 사용후핵연료 표준물질의 여러 부위에서 채취한 샘플의 화학분석으로 평가하는 방법이 가장 바람직하나 사용후핵연료의 분석 처리 용량의 한계로 인하여 충분한 수의 샘플에 대한 화학분석이 용이하지 않은 실정이다. 따라서 DFDF 핫셀에서 측정할 수 있는 DSNC와 감마선분석기를 이용하여 균질도를 평가하는 방법이 대안으로 제시되었다. 사용후핵연료 내의 화학성분들이 균일하게 분포한다면 핵분열생성물들도 균일하게 분포하게 될 것이다. 따라서 DSNC 측정에 의해 중성자 선원인 Cm의 균질도를 측정할 수 있으며, 감마선분석기를 이용하여 감마선원인 Cs의 균질도를 측정할 수 있을 것이다. 단 이로서 측정할 수 있는 균질도는 DSNC 또는 감마선분석기의 측정불확도에 의해 제한받게 되므로 표준선원을 이용하여 각 측정장치들이 가지고 있는 고유한 측정불확도를 먼저 측정해야 할 것이다. DSNC 또는 감마선분석기 중 측정불확도가 더 작은 방법에 의해 균질도가 확보된 사용후핵연료 건식 재가공 전환체를 화학분석하면 표준물질로 사용될 시편의 핵물질 함량을 측정할 수 있게 된다. 바람직하게는 Cm 함량을 화학분석에 의해 측정한 후 DSNC로 측정한 값과 비교하여야 하지만 Cm 함량의 화학분석 기술은 현재 개발 단계에 있어 측정된 U 및 Pu 함량과 연소도를 이용하여 Cm 함량을 구해야 할 것으로 판단된다. Fig. 1은 본 연구에서 확립한 사용후핵연료 표준물질 제조 절차를 요약한 흐름도를 보여주고 있다.

4. 사용후핵연료의 변화에 따른 영향 분석

사용후핵연료는 산화되어 분말형태로 취급될 수도 있으며 환원되어 금속 형태로도 전환될 수도 있다. 또한 연소도에 따라 핵분열성 물질의 밀도가 변화되며 필요에 의해서는 저연소도 사용후핵연료와 고연소도 사용후핵연료를 혼합할 수도 있다. 이러한 사용후핵연료의 변화가 핵물질 계량에 미치는 영향을 분석하기 위해서는 다양한 형태의 균질한 사용후핵연료 표준물질을 제조할 수 있는 건식 재가공 기술의 활용이 필수적인 것으로 판단된다.

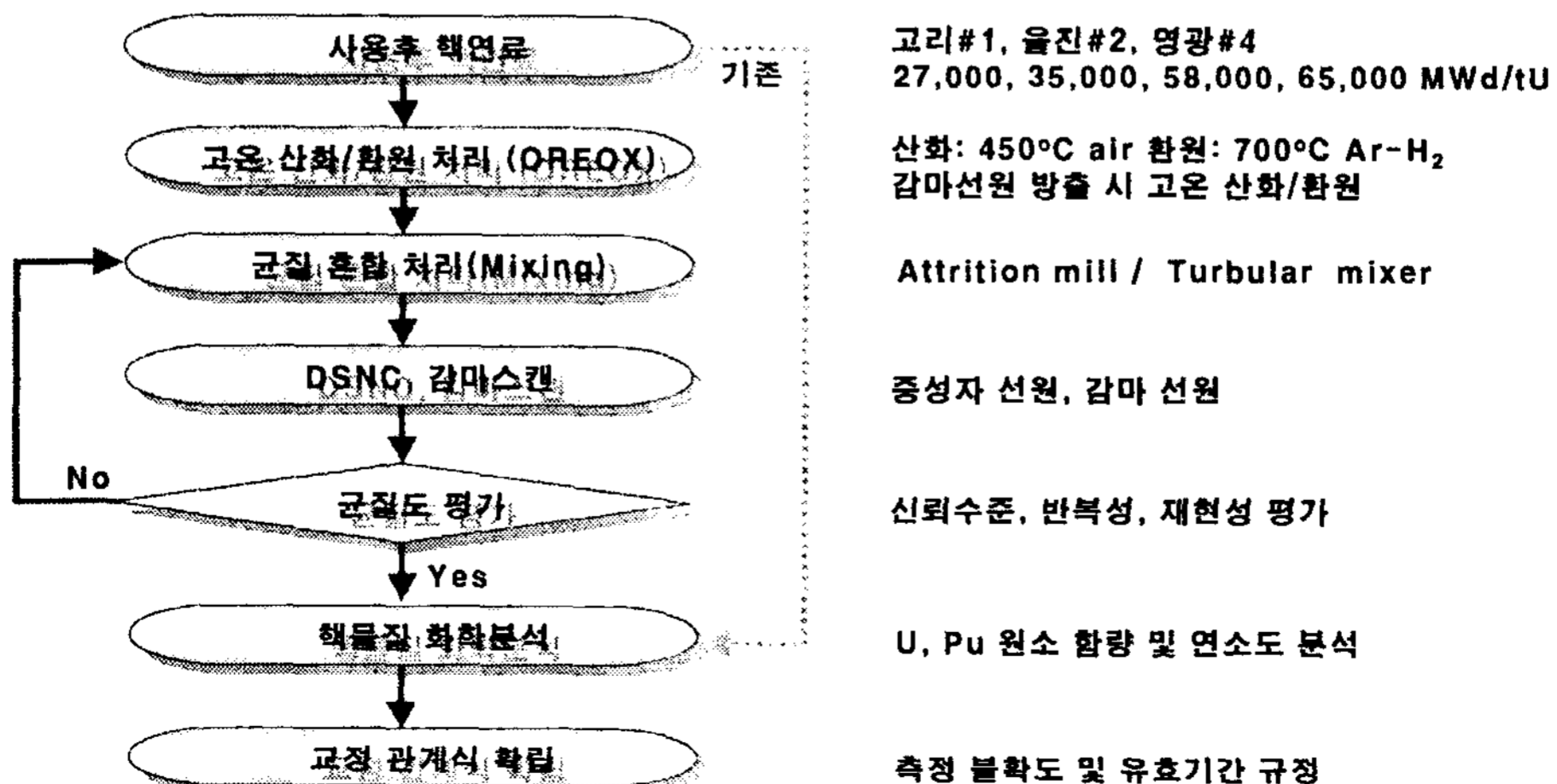


Fig. 1. Fabrication procedures of the reference material by using a dry processing of LWR spent fuel.