

연소도 혼합에 의한 사용후핵연료 표준물질 제조

류호진, 이도연, 조광훈, 박창제, 엄성호, 박근일
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
hiryu@kaeri.re.kr

1. 서론

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. 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. 분말형 사용후핵연료 표준물질의 장점은 다양한 연소도의 사용후핵연료를 혼합하여 핵물질 함량을 조절할 수 있다는 점이다. 따라서 핵연료 주기 시설에 적합한 핵물질 농도의 표준물질을 설계하여 제조할 수 있다. 실제로 사용되는 사용후핵연료의 핵물질 농도와 사용후핵연료 표준물질의 핵물질 농도가 유사할 경우 민감 핵물질에 대한 측정 정밀도가 매우 높고 측정 효율이 우수할 것으로 기대된다. 본 연구에서는 파이로 시설 설계, 파이로 공정 장치 설계, 처분을 위한 폐기물 특성치 도출 등에 사용될 수 있는 기준 핵연료와 유사한 핵물질 함량을 갖는 사용후핵연료 표준물질을 제조하기 위하여 고준위 폐기물 처분 연구 또는 파이로 연구등에서 기준 핵연료로 연구된 바 있는 농축도 4.0%, 연소도 45,000 MWd/MTU, 냉각기간 10년에 해당하는 조건을 참고로 하였다. 현재 사용되는 핵연료가 초기 농축도 4.5%에 55,000 MWd/MTU 이상의 평균 방출 연소도를 지향하는 점을 고려하면 향후의 기준핵연료의 평균 연소도는 더욱 향상될 것으로 예상된다.

2. 사용후핵연료 연소도 혼합

여러 연소도의 사용후핵연료를 혼합할 때 U-235, Pu-239 등의 핵물질 농도는 연소도에 따라 선형적으로 변화하지 않기 때문에 기준핵연료와 유사한 핵물질 농도를 갖는 사용후핵연료 표준물질을 제조할 경우 기준이 되는 민감 핵물질을 선정할 필요가 있다. 표 1은 사용후핵연료 내에 존재하는 Pu, TRU(Pu, Np, Am, Cm), Cm 함량을 ORIGEN 코드로 계산한 결과이다. 연소도가 증가함에 따라 TRU 원소들의 함량이 증가하긴 하지만 그 변화 정도는 일정하지 않다. 이는 Pu 기준으로 사용후핵연료 표준물질을 제조할 경우 그 내부에 존재하는 TRU 함량 또는 Cm 함량은 기준 핵연료와 다를 수 있다는 것을 의미한다. 표 2는 기준 핵물질을 Pu, TRU, Cm으로 각각 설정함에 따른 27000, 65000 MWd/MTU 사용후핵연료의 혼합비율을 나타낸 것으로서 기준 핵물질이 변화함에 따라 사용후핵연료의 혼합비율은 모두 다름을 알 수 있다. 특히 Cm을 기준으로 할 경우 고연소도 사용후핵연료의 혼합 함량이 크게 감소하는데 이는 Cm 이 연소도가 증가함에 따라 다른 핵종에 비해 크게 증가하기 때문이다.

본 연구에서는 분말형 사용후핵연료 표준물질을 제조하기 위하여 기준 핵연료의 핵종 조성 중에서 Cm 을 기준으로 연소도별 혼합을 수행하였다. 저연소도 사용후핵연료 분말과 고연소도 사용후핵연료 분말을 혼합하였을 때의 Cm 농도가 기준 핵연료에 대하여 계산된 Cm 농도가 되도록 저연소도 사용후핵연료 분말과 고연소도 사용후핵연료 분말의 무게비를 조절하였다.

표 1. 여러 연소도의 사용후핵연료의 Pu, TRU, Cm 함량 비교

| 연소도 (MWd/MTU) | 27,000 (G23-B5) | 58,000 (K23-B16) | 65,000 (K23-M03) | 45,000 (농축도4.0% 냉각10년) |
|------------------|--------------------|---------------------|---------------------|---------------------------|
| Pu 함량(wt%) | 0.788 | 1.533 | 1.696 | 1.172 |
| TRU 함량(wt%) | 0.884 | 1.746 | 1.929 | 1.315 |
| Cm 함량 (wt%) | 0.0007 | 0.020 | 0.033 | 0.006 |

표 2. 기준 핵물질에 따른 27000, 65000 MWd/MTU 사용후핵연료의 혼합비율

| 기준 핵물질 | 27000 MWd/MTU | 65000 MWd/MTU |
|--------|---------------|---------------|
| Pu | 57.7 wt% | 42.3 wt% |
| TRU | 58.8 wt% | 41.2 wt% |
| Cm | 83.6 wt% | 16.4 wt% |

3. 연소도 혼합 분말의 핵물질 NDA 평가

기준 사용후핵연료로 선정된 초기농축도 4.0%, 방출연소도 45,000 MWd/tU, 냉각기간 10년 조건에 해당하는 Cm을 함유하도록 혼합된 저연소도와 고연소도 사용후핵연료 혼합 분말의 중성자 선량을 DSNC를 사용하여 측정하였다. 기준 사용후핵연료의 Cm 함량은 0.006 wt% 이므로 예상되는 DSNC 측정 중성자 선량은 단일 연소도 측정결과를 통하여 계산할 경우 68-87 (double rate)이다. 연소도가 다른 분말을 혼합하였을 경우 균질도를 평가하기 위하여 분말 혼합 공정을 거친 후 10g 샘플을 10개씩 채취하여 DSNC로 중성자 선량을 측정하였다. 측정된 중성자 선량은 그림 1과 같이 최저 49에서 최고 79의 범위를 나타내었으며, 평균 63.7 (double rate) 표준편차 10.2를 나타내었다. 한편 각 시편별로 샘플 간 측정에 의한 표준편차를 평균하면 5.0이 되어 시편 내에서의 연소도 혼합은 불확도 5% 수준으로 균질하게 혼합되었다고 할 수 있었다. 그러나 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. 이를 분석하기 위하여는 화학성분 분석을 통하여 실제 함유되어 있는 Cm 함량을 평가하는 것이 가장 바람직하나 현재까지는 Cm 분석기술이 국내에 확립되어 있지 않은 실정이므로, 여러 연소도의 Pu 및 U의 함량을 측정하여 계산된 Cm/Pu 비율 및 Cm/U 비율과 비교 분석하여야 할 것이다.

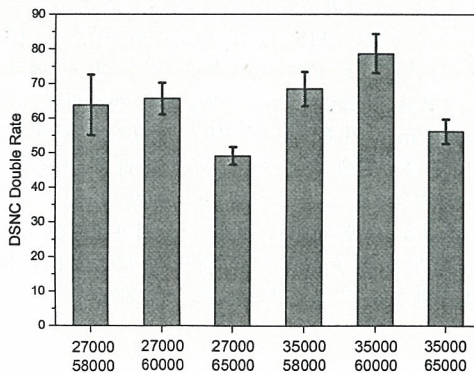


그림 1. 연소도 혼합 분말형 표준물질의 DSNC 측정 double rate 비교