

이중냉각 환형핵연료 연소도측정, U, Pu, Nd 동위원소 정량 및 불용잔유물 분석

김정석, 전영신, 박순달, 김영복, 박용준, 하영경
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 989번길 111
 njskim1@kaeri.re.kr

1. 서론

핵연료의 연소도 측정결과는 핵연료의 연소결과 일어나는 여러 현상, 즉, 입자성장, 팽윤 및 핵분열기체발생 등의 핵연료특성, 원자로출력 및 증성자속분포 등에 관한 중요한 핵공학적 정보를 제공하므로써 핵연료설계 및 노심설계 code의 검증과 개량, 연소도와 연료봉변수와의 상관관계, safeguards, 재처리 및 저장시설의 차폐, 사용후핵연료의 최종처분 등에 필수적인 기초자료를 제공한다. 사용후핵연료의 조사후시험 결과의 일관성을 확인하기 위하여 무거운원소나 핵분열생성물 및 각각의 동위원소들의 농도와 연소도 같은 핵연료변수 사이의 상관관계 연구가 이루어 지고 있다. 이런 상관관계는 핵연료의 확인, 연소도와 Pu 생성량의 예측 및 safeguards 목적 등으로 활용되고 있다.

조사핵연료의 화학분석을 수행하기 위해서는 핵연료의 질산용해를 필요로 한다. 용해 후 핵연료용액은 불용성잔유물을 포함하며 주로 조사과정 중에 형성된 금속상, 용해과정의 재침전물, 핵연료표면에 부착된 부식생성물 및 절단과정의 미세조각 등을 포함한다[1]. 불용성잔유물은 핵연료용해용액 중에 부유물형태로 존재한다. 이러한 잔유물의 양 및 조성을 확인함으로써 핵연료 조사이력의 이해, 용해과정에서의 산농도 등 용해조건의 선정, 화학적 분리과정(이온교환, 용매추출)에서의 간섭효과 예측 및 최적의 분리조건 설정을 위한 정보를 얻을 수 있다.

본 연구에서는 당 연구원에서 개발 중인 이중냉각 환형핵연료의 하나로조사 시편으로부터 화학분석용 핵연료시료를 취하여 당 연구실에서 확립한 방법에 준하여 핵연료시료를 용해하고 화학적 방법(Nd-148 지표원소법)으로 연소도를 측정하였다[2,3]. 병행하여 핵연료시료 중의 U, Pu 및 Nd 동위원소조성과 총량을 정량하였으며, 용해과정 중 생성된 불용성잔유물을 여과법으로 회수하고 화학적 성분을 감마선분광분석 및 전자미세탐침분석(EPMA)으로 조사하였다.

2. 실험 및 결과

2.1 핵연료용해 및 분석시료 준비

하나로에서 조사된 이중냉각 환형핵연료는 절단 후 연소도측정 및 화학분석을 위하여 당 연구실 화학실험으로 이송하였다. 핫셀 내에서 HNO₃ (1+1) 용액으로 90°C에서 8 시간 동안 1 단계 용해시키고, 이어 진한 HNO₃ 용액 첨가 후 8 시간 동안 2 단계 용해시켰다. 용해용액을 희석하여 분석시료를 준비하고 일정량을 glove box로 이송하였다.

2.2 화학적 전처리 및 분리

본 핵연료시료의 연소도측정 및 U, Pu, Nd 동위원소 정량을 위한 화학적 전처리 및 2 단계 분리는 당 연구실에서 확립한 과정[2]에 준하여 수행하였다. 핵연료시료당 분석시료는 2 개씩 준비하여 하나는 스파이크를 첨가하지 않고(unspiked), 다른 하나는 3 중 스파이크를 첨가한(spiked) 후 전처리 및 분리를 하였다. 사용한 3 중 스파이크(²³³U, ²⁴²Pu, ¹⁵⁰Nd)의 조성은 Table 1과 같다.

Table 1. Isotopic compositions of the certified spikes.

Spike	Isotope	Atom%
²³³ U (ORNL)	U-233	99.470
	U-234	0.166
	U-235	0.064
	U-236	0.015
	U-238	0.282
²⁴² Pu (IRMM)	Pu-238	0.0008
	Pu-239	0.0826
	Pu-240	0.0108
	Pu-241	0.0005
	Pu-242	99.9038
	Pu-244	0.0015
¹⁵⁰ Nd (ORNL)	Nd-142	0.77
	Nd-143	0.39
	Nd-144	0.88
	Nd-145	0.34
	Nd-146	0.84
	Nd-148	0.66
	Nd-150	96.13

2.3 질량분석 및 동위원소 정량

화학적 분리과정에 의하여 스파이크 첨가 및 미첨가시료로부터 U, Pu 및 Nd를 수집한 후 화학적 농축과정을 거쳐 열이온화 질량분석기로 동위원소 조성을 측정하였다(Table 2). Nd의 경우에는 질량분석 측정결과에 질량편차 바이아스 및 천연으로부터의 오염을 보정하여 산출하였다. 이 결과들을 바탕으로 동위원소희석 질량분석법(IDMS)으로 분석시료 중의 U, Pu 및 Nd 각 동위원소 및 총량을 정량하였으며 시료준비 이력을 바탕으로 핵연료 g당 함유량을 산출하였다.

Table 2. Isotopic compositions of uranium separated from the dual-cooled annular nuclear fuel samples.

Isoto.	Atom%		
	S-1	S-2	S-3
²³⁴ U	0.02±0.001	0.02±0.001	0.02±0.002
²³⁵ U	1.61±0.003	1.68±0.003	1.49±0.003
²³⁶ U	0.17±0.003	0.17±0.005	0.19±0.006
²³⁸ U	98.19±0.011	98.13±0.014	99.29±0.007

Table 3. Total burnup determined by the Nd-148 method for the dual-cooled annular nuclear fuel samples.

Sample	GWD/MtU	
	Measured	Calculated*
S-1	9.69±0.30	8.1-10.9
S-2	8.88±0.28	
S-3	10.71±0.33	

* Calculated from ORIGEN code for rod average

2.4 화학적 연소도측정

상기 과정에 의하여 스파이크 첨가 및 미첨가 시료에 대한 U, Pu 및 Nd 동위원소 조성 측정이 완료되면 가장 널리 이용되고 있는 공인된 연소도 측정방법인 Nd-148 지표원소법[2,3]으로 핵연료 시료에 대한 연소도(GWD/MtU)를 측정하였으며 예측결과와 잘 일치한 결과를 얻었다(Table 3).

2.5 불용성잔유물의 성분원소 분석

용해과정에서 생성된 불용성잔유물의 성분을 분석하여 핵연료특성을 파악하고 이 물질에 의한 화학적 용해와 분리과정에서의 간섭효과를 검토하고자 하였다. 부유물상태의 잔유물을 Glass fiber 필터를 이용 상압여과하고 이어 1 M HNO₃ 용액과 증류수로 상압 및 공기압으로 잔유물을 세척하였다. 건조 후 잔유물을 포함한 여과지를

소량 취하여 감마선분광분석 및 gold 코팅을 거친 미세탐침분석(EPMA)을 수행하였다. 감마선분광분석 결과, 3종의 시료 모두 비슷한 결과를 나타내었으며, 주핵종은 ⁶⁰Co, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ¹⁴⁴Ce, ⁹⁵Nb, ¹⁰⁶Ru/Rh, ¹²⁵Sb으로 미량의 핵연료용액이 Glass fiber 필터에 흡착된 것을 보여주었다(Fig. 1). EPMA 분석 결과, Glass fiber 필터의 성분 및 불순물 원소만 검출되었으며, 핵연료 내에서 생성되는 Ru, Rh, Pd, Mo 등을 포함한 불용성의 금속상(white inclusion)은 보이지 않았다. 이 결과는 본 핵연료들이 자연소피므로서 핵연료시료 중에 핵분열생성물이 적게 생성되었지만 본 연구의 용해과정에서 난용성원소를 포함한 성분원소들이 효과적으로 용해된 것으로 판단되었다.

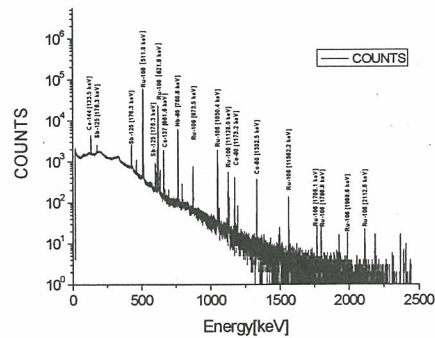


Fig. 1. Gamma-ray spectrum for insoluble residue obtained from a dual-cooled annular nuclear fuel sample.

3. 결론

당 연구실에서 확립한 연소도측정기술을 적용하여 이중냉각 환경핵연료의 연소도측정 및 U, Pu Nd 동위원소정량이 가능하였다. 또한 핵연료 시료 중의 다른 성분원소들의 정량에도 본 연구의 용해방법을 적용하면 효과적일 것으로 판단되었다.

4. 참고문헌

[1] J. S. Kim et al., J. Korean Nucl. Soc., Vol. 30, No. 2, pp. 99-111, 1998.
 [2] J. S. Kim et al., J. Nucl. Sci. & Technol., Vol. 44, No. 7, pp. 1015-1023, 2007.
 [3] ASTM E321-96, Annal Book of ASTM Standards, Vol. 12.02, 2005.