

Self-induced XRF를 이용한 사용후핵연료의 연소도 평가

이승규, 서희, 원병희, 이채훈, 김호동, 박근일, 권형문, 박세환*
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
*ex-spark@kaeri.re.kr

1. 서론

엑스선 형광분석법(X-ray fluorescence, XRF)은 사용후핵연료에 존재하는 Pu의 양을 직접적으로 측정할 수 있는 여러 기술 중의 하나이다. 기존의 XRF 분석기술은 시료에 엑스선을 조사시켜 발생하는 특성 엑스선을 분석하여 원소의 성분을 분석하는 방법이다. 본 연구에서 사용한 XRF 기술은 self-induced XRF 방식으로 사용후핵연료 내 핵분열 생성물의 붕괴에 의해서 자체적으로 발생된 감마선 등에 의하여 원자의 에너지 준위가 들뜨게 되며 이로 인하여 Pu와 U의 특성 엑스선이 발생하는 원리를 이용한다 [1]. 이러한 특성 엑스선은 원소마다 고유한 에너지를 갖기 때문에, Pu와 U의 K-각 엑스선 피크의 비율을 측정하는 것은 사용후핵연료에서의 Pu와 U의 상대적 농도에 대한 정보를 제공한다.

국내의 가압수형 원자로 (PWR) 에서 발생하는 사용후핵연료는 연소도에 따라 U과 Pu의 존재량이 다르게 된다. 일반적으로 같은 연소 주기를 갖는 사용후핵연료 시편들의 경우 일반적으로 연소도가 높은 시편에 존재하는 Pu 양이 더 많게 된다.

본 연구에서는 한국원자력연구원에서 보유하고 있는 서로 다른 연소도를 갖는 사용후핵연료 시편을 이용하여 Self-induced XRF의 연소도 평가 가능성에 대한 실험을 수행하였다.

2. 본론

2.1 Self-induced X-ray Fluorescence (XRF)

사용후핵연료에서 발생하는 Pu의 K-각 엑스선 피크를 측정하기 위해서는 에너지 분해능이 높은 HPGe (High Purity Germanium) 검출기를 사용하여야 한다. Table 1은 U과 Pu에서 방출 하는 주요 엑스선 에너지이다. Pu에서 발생하는 K-각 엑스선이 103.7 keV 영역에서 측정이 되는데, 이때, 105 keV 에너지를 갖는 Eu-155에 의한 피크와의 구별이 측정시 매우 중요한 요소가 된다. 시뮬레이션 등을 통하여 Eu-155에 의한 감마선과의 구별을 위

하여서는 1 keV 이내의 에너지 분해능을 갖는 검출기가 필요하다는 조건을 도출하였다. 분석을 위하여 사용된 검출기는 Be 입사창을 갖는 캔버라사의 GL0210 모델의 Low-energy HPGe (LEGe) 검출기로 바이어스 -1000 V를 걸어 사용한다.

Table 1. Uranium and Plutonium x-ray data [2]

X-ray	Energy (keV)		Relative Intensity	
	Uranium	Plutonium	Uranium	Plutonium
K _{α1}	98.44	103.76	100	100
K _{α2}	94.66	99.55	61.9	62.5
K _{β1}	111.31	117.26	22.0	22.2
K _{β2}	114.50	120.60	12.3	12.5
K _{β3}	110.43	116.27	11.6	11.7

2.2 사용후핵연료 시험연소체 측정 수행

사용후핵연료 시험연소체의 측정은 한국원자력연구원의 조사후시험시설 (Post Irradiation Examination Facility, PIEF) 핫셀에 검출기를 설치하여 수행하였다. Fig. 1 (a)는 기존 핫셀에 설치하여 사용하던 검출기와 핫셀 내 콜리메이터 등의 구조도이며, Fig. 1 (b)는 실제로 LEGe 검출기를 PIEF 핫셀 실험실 내에 설치한 것을 보여주고 있다.

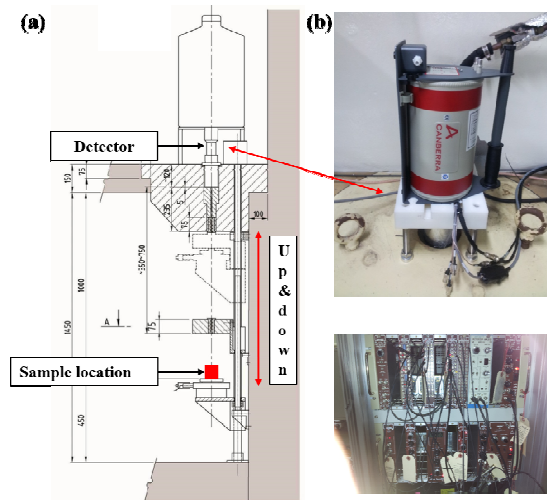


Fig. 1. (a) PIEF examination cell, (b) LEGe detector and electronics (NIM-module).

실험에 사용한 사용후핵연료 시험연소체는 시편의 연소도 및 초기 농축도 등을 고려한 평균 연소도 39.8 ~ 57.2 GWd/tU 범위를 갖고 있는 고리 2호기 W93 시범 연료체를 사용하여 제작된 시편을 선정하였다. 시편의 초기 농축도, 연소도, 연소 이력 등의 정보 등으로 ORIGEN 코드를 사용한 Pu/U 핵종비를 추정/계산하였으며, 이를 XRF 실험 결과와 비교, 분석하는 방식으로 XRF 측정에 대한 적용 가능성을 확인하였다. Fig. 2 (a)는 W93L02-08RM 시편에 대한 에너지 스펙트럼이고, (b)는 103.7 keV에서의 Pu K-각 엑스선 피크와 그 주위 에너지 영역의 스펙트럼이다.

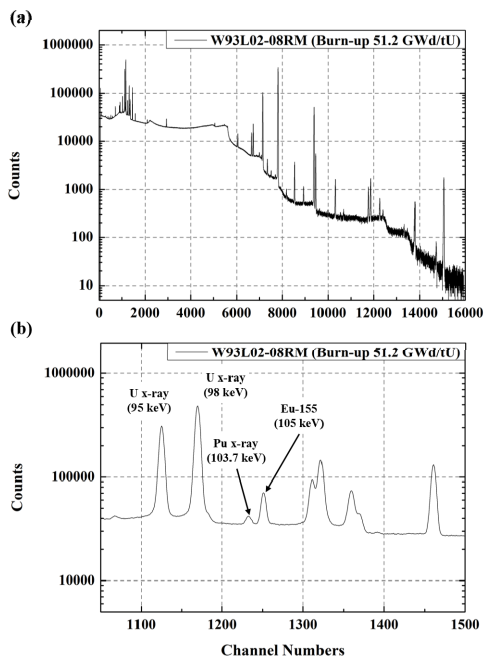


Fig. 2. (a) W93L02-08RM Pulse height spectrum, (b) 103.7 keV Pu K-shell X-ray peak.

XRF의 측정은 백그라운드에 의한 오차를 줄이기 위하여 한 시편 당 15 ~ 20 시간 동안 측정을 수행하였으며, 피크 분석은 ORTEC 사의 신호 분석 프로그램인 MAESTRO를 사용하여 분석을 수행하였다. 실험 분석 결과와 시험연소체 시편의 Pu/U atomic ratio와의 상관관계를 확인하기 위하여 시편의 초기 농축도, 원자로 운전이력, Fuel assembly type 등의 입력값을 이용하여 ORIGEN 계산을 수행하였다. 측정된 Pu/U 엑스선 피크비와 ORIGEN 계산으로 얻어진 Pu/U atomic ratio를 비교한 결과는 Fig. 3 (a) 와 같다. 동일한 측정 결과를 시편의 연소도와 비교한 결과 그래프는 Fig. 3 (b)와 같으며, 시편의 연소도가 증가함에 따라 Pu/U의 엑스선 피크비도 선형적으로 증가하는 것을 확인할 수 있다.

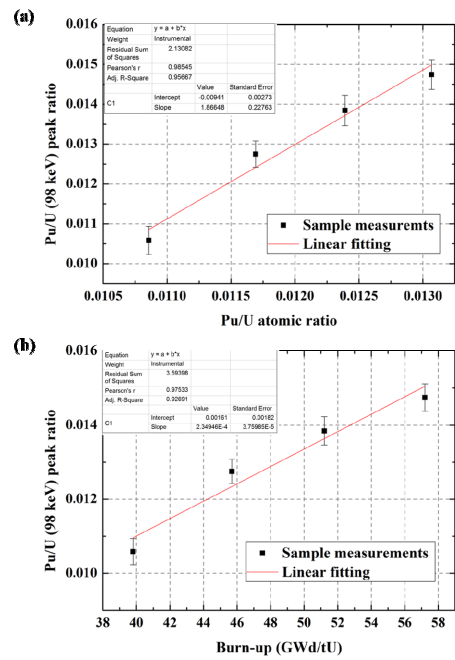


Fig. 3. (a) Pu/U X-ray peak ratio vs. Pu/U atomic ratio, (b) Pu/U X-ray peak ratio vs. Burn-up.

3. 결론

본 연구에서 실험 결과와 ORIGEN 계산 결과 등을 통하여 사용후핵연료 시편에 대한 Pu/U 엑스선 피크비와 연소도에 대한 상관 관계를 확인하였다. 실험 결과 연소도가 증가함에 따라 Pu/U 엑스선 피크비도 선형적으로 증가하는 것을 확인할 수 있었다. XRF 측정시 Pu에서 발생하는 엑스선의 크기가 매우 작아 측정 시간이 매우 길다는 문제점을 확인하였으며, 이는 현재 Compton suppression 기법을 적용하여 백그라운드를 저감하는 방안으로 해결하기 위한 연구를 진행하고 있다.

4. 감사의 글

이 논문은 2015년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임 (No.2012M2A8A502594).

5. 참고문헌

- [1] 김용균 외, "방사선 측정과 취급" 한국원자력연구소, 2004.
- [2] Doug Reilly, Norbert Ensslin, Hastings Smith, Jr. Sarah Kreiner, "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials" (1991).