

조사 U-Mo 분산핵연료 중 U, Pu, Nd 동위원소, 방사성핵종 정량 및 연소도 측정

김정석*, 전영신, 박양순, 김영복, 송병철, 강병만, 박재일, 하영경
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111
 *njskim1@kaeri.re.kr

1. 서론

높은 중성자속을 유지할 수 있고 사용한 핵연료의 처분이 용이한 차세대 연구로용 핵연료로서 고밀도 우라늄의 U-Mo 분산핵연료 개발이 전세계적으로 진행 중에 있다. U-Mo 고밀도핵연료의 개발 및 성능검증이 완료되면 현재 연구용원자로에서 사용되고 있는 uranium silicide 핵연료는 U-Mo 분산핵연료로 전환될 것으로 기대되며, 현재 건설이 진행 중인 기장 수출용 신형 연구용원자로(KJRR)에도 플레이트 타입의 U-Mo 분산핵연료가 사용될 예정이다. 조사된 분산핵연료의 화학적 조사후시험(연소도측정 및 핵종분석 등)을 수행하기 위해서는 핵연료의 용해와 분석과 관련된 성분원소의 분리 및 분석기술이 확립되어야 한다[1]. U-Mo 분산핵연료는 알루미늄 플레이트 피복재로 둘러싸여 있기 때문에 일반적인 핵연료 용해방법(질산용해 등)으로는 효과적으로 용해시킬 수 없으며 방법개발이 필요하다. U, Pu, Nd 등 분산핵연료 성분원소 분석에 동위원소희석 열이온화질량분석(ID-TIMS) 기술이 이용되었다. 이 방법은 핵연료 중의 성분원소들의 균질분포와 핵분열성 동위원소의 밀도를 동시에 측정할 수 있는 장점 뿐아니라 정밀도 및 정확도가 매우 우수(1% 이상) 한 것으로 알려졌다[2].

본 연구에서는 앞서 미조사 U-Mo 분산핵연료를 이용하여 확립한 용해, 분리 및 질량분석 기술을 응용하여[3], 하나로에서 조사시킨 U-Mo 분산핵연료 중의 U, Pu, Nd 및 성분 동위원소들을 U-233, Pu-242 및 Nd-150을 스파이크로 이용하는 동위원소희석 질량분석기술로 동시정량하고 이를 기반으로 핵연료 연소도를 측정하였다. 또한 핵연료특성 및 연소도에 대한 평가원소로 이용할 수 있는 방사성핵종들을 정량하기 위하여 핵연료 용해용액 일정량을 취하여 희석후 화학적 분리없이 감마선분광분석을 수행하였다.

2. 실험 및 결과

2.1 조사 U-Mo 분산핵연료 용해 및 시료준비

본 연구에 사용한 조사 U-Mo 분산핵연료는

U-7wt% Mo(19.75wt% U-235 enrichment)과 Al-5wt%Si 분말 혼합체의 핵연료심재 및 Al 6061 plate 피복재로 구성되었다. 분산핵연료 중의 U, Pu, Nd 및 성분 동위원소와 방사성핵종 정량 및 화학적 방법에 의한 연소도측정을 위한 전반적인 과정은 Fig. 1과 같다. 핵연료용해는 피복재를 용해하는 1 단계와 심재핵연료를 용해하는 2단계 과정을 연속적으로 수행하였다. 각 시편 용해용액을 일정량씩 취하고 희석하여 감마선분광분석 및 동위원소희석 질량분석을 위한 시료를 준비하였다.

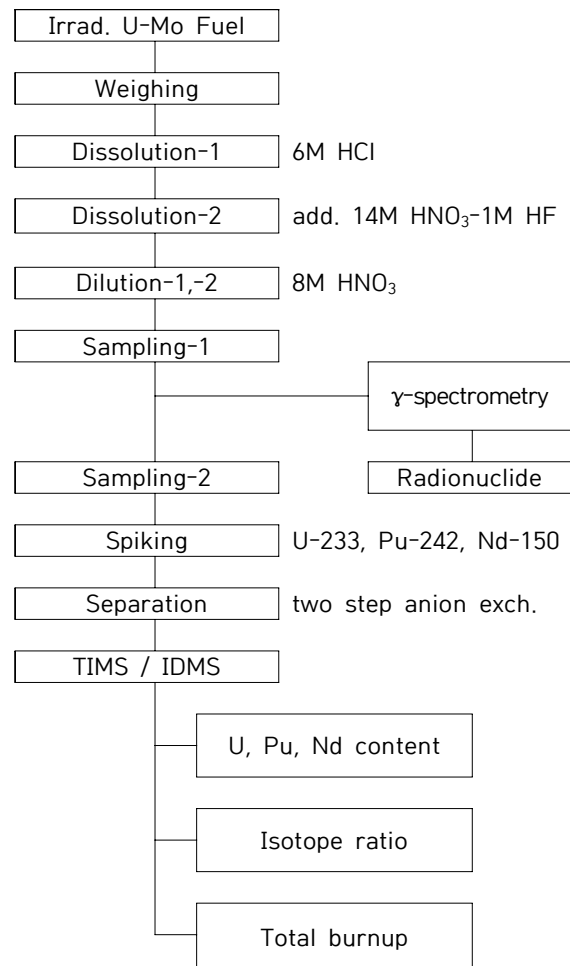


Fig. 1. Analytical processes for the determination of U, Pu, Nd isotopes, radionuclides and total burnup for the irradiated U-Mo dispersion fuel.

2.2 감마선분광분석에 의한 핵종분석

고방사성의 분산핵연료시료 중의 방사성핵종 분석을 위하여 질량분석용 시료와 별도로 핵연료용해 용액 일정량을 취하여 희석 후 일정량을 계측용기에 담아 감마선분광분석을 수행하였다(Table 1 및 Fig. 2). Table 1에 나타난 바와 같이 8종의 주요 핵종이 검출되었으며, Cs-137, Ce-144, Ru-106 및 Nb-95가 높은 방사능을 보였다.

Table 1. Distribution of gamma emitters in the irradiated U-Mo dispersion fuel samples

Nucl.	Activity (Bq/g-sample)		
	8-C-2	8-C-1	6-C-1
¹³⁴ Cs	2.39x10 ⁹ ± 1.21x10 ⁷	2.14x10 ⁹ ± 9.91x10 ⁶	2.20x10 ⁹ ± 1.18x10 ⁷
⁶⁰ Co	< 3.73x10 ⁶	< 2.88x10 ⁶	< 3.80x10 ⁶
¹³⁷ Cs	7.60x10 ⁹ ± 3.15x10 ⁷	6.62x10 ⁹ ± 2.37x10 ⁷	6.74x10 ⁹ ± 2.72x10 ⁷
¹⁴⁴ Ce	7.25x10 ¹⁰ ± 1.56x10 ⁸	6.43x10 ¹⁰ ± 1.23x10 ⁸	6.49x10 ¹⁰ ± 1.41x10 ⁸
¹⁵⁴ Eu	1.43x10 ⁸ ± 1.90x10 ⁷	1.27x10 ⁸ ± 1.67x10 ⁷	1.45x10 ⁸ ± 1.40x10 ⁷
¹⁰⁶ Ru	7.29x10 ⁹ ± 2.00x10 ⁸	6.20x10 ⁹ ± 1.43x10 ⁸	6.30x10 ⁹ ± 7.43x10 ⁷
¹²⁵ Sb	3.26x10 ⁸ ± 1.86x10 ⁷	2.85x10 ⁸ ± 1.56x10 ⁷	2.95x10 ⁸ ± 1.96x10 ⁷
⁹⁵ Zr	5.82x10 ⁹ ± 3.24x10 ⁷	5.07x10 ⁹ ± 2.68x10 ⁷	5.13x10 ⁹ ± 2.96x10 ⁷
¹⁴⁰ Ba	< 4.52x10 ⁷	< 3.41x10 ⁷	< 4.62x10 ⁷
⁹⁵ Nb	1.28x10 ¹⁰ ± 3.11x10 ⁷	1.11x10 ¹⁰ ± 2.40x10 ⁷	1.11x10 ¹⁰ ± 2.70x10 ⁷

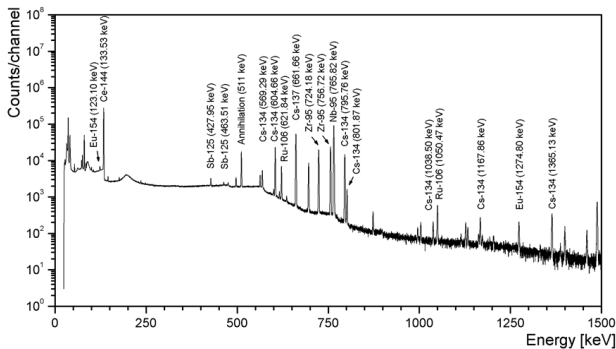


Fig. 2. γ -spectrum for an irradiated U-Mo dispersion fuel sample.

2.2 U, Pu, Nd 동위원소 정량 및 연소도측정

핵연료시료 중의 U, Pu, Nd 및 성분 동위원소 (U-234, U-235, U-236, U-238, Pu-238, Pu-239,

Pu-240, Pu-241, Pu-242, Nd-143, Nd-144, Nd-145, Nd-145, Nd-148 및 Nd-150)들을 동시정량하고 연소도를 측정하기 위한 화학적 전처리, 2 단계 음이온교환분리, 열이온화 질량분석 및 3중 스파이크(U-233, Pu-242, Nd-150)를 이용한 동위원소희석 질량분석(IDMS)은 당 연구실에서 확립한 절차[1,3]에 준하여 수행하였다.

3. 결론

미조사 U-Mo 분산핵연료를 이용하여 확립한 핵연료 용해, 핵연료 중의 U, Pu 및 Nd 분리, 질량분석기술을 조사 U-Mo 분산핵연료에 효과적으로 적용할 수 있었다. 여러 Nd 지표원소(Nd-148, Nd-145+146, Nd-total 등)를 이용한 연소도측정 및 상호비교, U, Pu 동위원소 상관관계를 이용한 핵연료분석이 가능하였다. 또한 방사성 핵분열생성물을 지표원소(Cs-137 등)로 이용하는 연소도측정 및 방사능비(¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 등)에 의한 상관관계 연구도 가능하였다. 질량분석 및 방사능측정 기술을 효과적으로 병행 이용할 경우 조사 U-Mo 분산핵연료에 대한 조사핵연료분석이 이루어질 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

- [1] J.S. Kim, Y.S. Jeon, K.S. Choi, B.C. Song, S. and W.H. Kim, "Burnup Measurement of Spent U₃Si/Al Fuel by Chemical Method Using Neodymium Isotope Monitors", Nucl. Eng. Technol., 33(4), 375-385 (2001).
- [2] K.L. Ramakumar, M.K. Saxena, V.A. Raman, V.L. Sant, V.D. Kavimandan, B.P. Datta and H.C. Jain, "Determination of Zirconium in U-Zr-Al and Pu-Zr-Al Alloys by Isotope Dilution Thermal Ionization Mass Spectrometry", J. Radioanal. Nucl. Chem. Art., 158(1), 13-21 (1992).
- [3] 김정석, 전영신, 박양순, 탁영욱, 박재일, 박용준, "U-Mo 금속핵연료 용해 및 성분 U, Mo 및 동위원소 동시정량", 한국방사성폐기물학회 2014 추계학술발표회 논문요약집, 12(2), 155-156, 10.15~17, 2014, 여수.