화학적 방법에 의한 조사 TRISO 핵연료 연소도측정

김정석*, 강병만, 박양순, 김영복, 박재일, 하영경
한국원자력연구원, 대전광역시 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 중성자속분포 등에 관한 중요한 핵공학적 정보를 제공하므로써 핵연료설계 및 노심설계 code의 검증과 개량, 연료봉변수와의 상관관계, safegads, 재처리 및 저장시설의 차폐, 사용후핵연료의 최종처분 등에 필수적인 기초자료로 활용되고 있다.

미래 친환경 에너지로 주목받고 있는 수소를 대량생산할 수 있는 차세대 원자로로서 초고온가스로(very high temperature reactor, VHTR)에 대한 연구가 많이 진행 중에 있다. 초고온가스로는 고온 및 고연소도에 견딜 수 있도록 수백 미크론의 세라믹스 핵연료(kernel)를 열분해 탄소로 피복한 3중 피복 연료입자(tri-isotropic coated fuel, TRISO)를 사용한다. 이러한 고밀도 및 저밀도 열분해탄소층(PyC)과 SiC층을 가진 피복입자핵연료를 조사후 화학분석하기 위해서는 핵연료의 용해가 선행되어야 하나 핵연료의 특수성 때문에 일반적인 산용해 방법으로는 용해가 불가능하다. 용해는 2가지 방법, 즉, 핵연료분쇄 후 무기산을 이용한 침출법과 밀폐된 반응로를 이용하여 고온산화로 완전 용해시키는 방법 등이 연구되어 왔으며, 후자의 경우 핵연료 및 핵분열생성물의 손실, 핫셀내에서의 취급의 어려움 등이 문제점으로 제시되었다[1,2].

화학적 방법에 의한 조사핵연료의 연소도측정은 안정한 핵분열생성물인 ^{148}Nd, $^{145+145}$Nd, ^{139}La 등이 지표원소로 많이 되었으며 동위원소희석 질량분석 및 고성능액체 크로마토그래피 기술 등이 응용되어 왔다. 방사성 핵분열생성물로 ^{137}Cs, ^{144}Ce, ^{106}Ru, ^{95}Zr 등이 지표원소로 되었으며 핵종분석을 위한 감마선분광분석 및 무거운 동위원소 정량을 위한 다른 분석기술이 병합하여 응용되어 왔다[3].

본 연구에서는 하나로에서 조사시킨 TRISO 핵연료를 화학적 방법으로 연소도를 측정해 보았다. 연소도는 공인된 Nd-148 방법에 의한 측정을 목표로 하였으며 분석결과의 신뢰확인을 위하여 Nd-(145+146) 등의 안정동위원소 및 ^{137}Cs, ^{144}Ce, ^{106}Ru 등의 방사성 핵분열생성물을 지표원소로 이용한 연소도 측정결과와 비교해 보았다.

2. 실험 및 결과

2.1 핵연료용해 및 분석시료 준비

하나로에서 조사시킨 TRISO 핵연료 입자를 케스크에 담아 당 연구실 화학핫셀로 이송하였다. 핫셀 내에서 시료분취 및 무게측정 후 폴리에틸렌 용기와 마노(grinding medium)를 이용하여 분쇄하였다. 질산/불산 용액으로 90^{0}C에서 12 시간 1차 용해하고 이어 질산/불산/황산 용액으로 140^{0}C에서 4 시간 동안 2차 용해하였다. 연소도측정과 관련한 전반적인 과정은 Fig. 1과 같다.

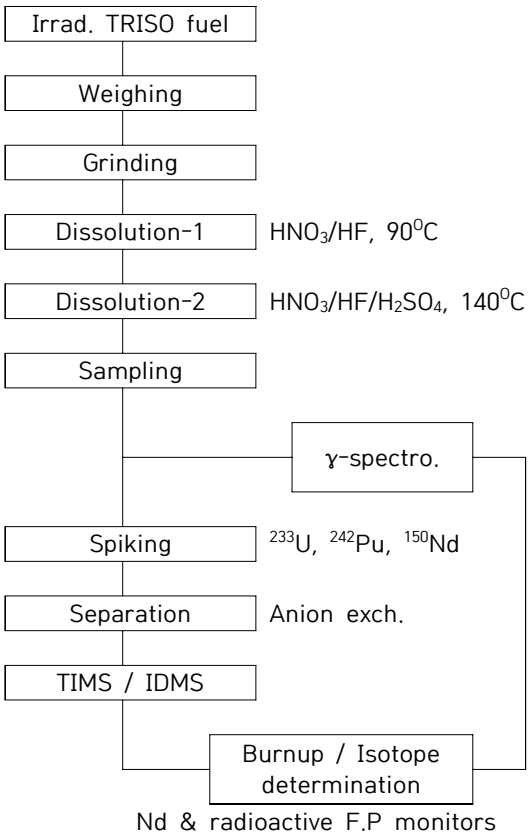

Fig. 1. Analytical processes for burnup determination of irradiated TRISO fuel by chemical methods.

2.2 방사성 핵분열생성물 지표원소 정량

금속핵연료 용해용액 중의 방사성핵종(^{137}Cs, ^{144}Ce, ^{106}Ru 등)을 감마선분광분석으로 측정하고 붕괴기간 보정 및 시료 중의 원자수를 산출하여 정량하고 연소도측정 및 지표원소로서의 이용가능성을 검토하였다.

2.3 U, Pu, Nd 분리 및 동위원소 정량

먼저 핵연료시료의 연소도측정을 위한 U, Pu, Nd 분리를 당 연구실에서 확립한 절차[3]에 준하여 2단계 음이온교환분리, 열이온화 질량분석(TIMS) 및 동위원소희석 질량분석(IDMS)은 수행하였다. 그 결과, U과 Pu는 정상적으로 순수분리및 동위원소측정과 정량이 가능하였다. 반면 핵연료입자의 분쇄에 의하여 생성된 불용성의 열분해탄소 미립자가 음이온교환 크로마토그래피 과정에서 비수용매(nitric acid-methnol)를 이용한 Nd의 순수분리를 간섭하였다. 따라서 종래의 분리과정을 추가 보완하여 Nd을 분리하고 동위원소조성을 측정하였다.

2.4 연소도측정 및 교차분석

Nd 지표원소를 이용한 연소도측정은 ^{148}Nd, ^{145}Nd+^{146}Nd 및 Nd 전 동위원소 합(Nd-total)을 이용하는 세가지 방법으로 측정하였으며 모두 IDMS법으로 정량한 원자수를 이용하였다[3]. Nd 및 방사성 핵분열생성물 지표원소를 이용한 연소도측정 모두 계산에 필요한 시료 중의 U과 Pu 농도는 모두 IDMS법으로 정량한 원자수를 이용하였다. 감마선분광분석으로 측정한 몇가지 방사성 동위원소들의 방사능비를 산출하고 연소도지표원소로서의 이용가능성을 검토하였다.

3. 결론

TRISO 입자핵연료의 연소도측정을 위하여 수행한 전처리과정(분쇄 및 침출)은 매우 효과적이었다. 정확한 연소도측정 방법으로 평가되고 있는 Nd 지표원소법, 약간의 신속성을 가지는 방사성 핵분열생성물 지표원소법 및 방사능측정에 의한 상대적 연소도측정법(^{134}Cs/^{137}Cs 등)을 응용할 경우 효과적인 조사핵연료분석이 이루어질 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

[1] A. J. Fudge et al., "Determination of burnup in the high temperature reactor fuel cycle", IAEA-SM-149/21, Analytical methods in the nuclear fuel cycle, IAEA Vienna, 1972.

[2] K. P. Skolo et al., J. Nucl. Technol., Vol. 420, pp. 342-346, 2012.

[3] J. S. Kim et al., J. Nucl. Sci. & Technol., Vol. 44, No. 7, pp. 1015-1023, 2007.

Table 1. Isotopic compositions of U and Pu sepatated from irradiated TRISO fuel samples

Isotope		Atom %	
		B2	B15
U	U-234	0.033	0.033
	U-235	1.417	1.404
	U-236	0.498	0.499
	U-238	98.052	98.064
Pu	Pu-238	0.142	0.138
	Pu-239	72.115	71.258
	Pu-240	21.144	21.947
	Pu-241	5.254	5.261
	Pu-242	1.345	1.396

Table 2. Determination of U, Pu and their isotopes in irradiated TRISO fuel samples by isotope dilution mass spectrometry

Isotope		Weight (μg)	
		B2	B15
U	U-234	0.377	0.357
	U-235	16.192	15.298
	U-236	5.717	5.461
	U-238	1134.874	1081.969
	Total	1157.160	1103.085
Pu	Pu-238	0.007	0.006
	Pu-239	3.552	3.193
	Pu-240	1.046	0.988
	Pu-241	0.261	0.238
	Pu-242	0.067	0.063
	Total	4.933	4.488

Table 3. Distribution of γ-emitters in irradiated RISO fuel samples

Sample	Activity ratio		
	^{134}Cs/^{137}Cs	^{154}Eu/^{137}Cs	^{144}Ce/^{106}Ru
B2	0.280	0.019	4.013
B15	0.275	0.019	4.005