

2002 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

사용후핵연료 차세대관리공정 핵물질 계량을 위한 방안분석

Review of Methodological Analysis for the Nuclear Material Accounting and Control in the Advanced Spent Fuel Management Process

박광준, 신희성, 조일제, 서기석, 석호천

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

사용후핵연료의 방사화학적 처리시설에서는 플루토늄이 취급되기 때문에 핵물질 계량은 필수적이다. 이러한 시설에서 효과적인 핵물질 계량 및 국제 핵사찰은 주로 비파괴 측정에 의존하고 있다. 그러므로 차세대 관리공정의 핵물질 계량에 있어서 방사선에 근거한 비파괴 평가기술을 검토하여 그 적용성을 파악하는 것이 중요하다. 기존의 비파괴 측정 방법을 검토한 결과, X-선형광분석, 열량측정방법, 감마선 분광분석방법은 차세대관리공정 실증시설의 규모 및 최종 생산물내 일부 핵분열 생성물의 잔존으로 인해서 적용에 제한을 받게되는 것으로 분석되었다. 따라서 차세대관리공정 핵물질 측정방안으로서 중성자측정기술이 적용성이 큰 것으로 나타났다. 이러한 핵물질 측정방안 분석결과는 차세대관리공정 실증시설의 공정장치 배치와 더불어 핵물질 측정장비 설치공간 분배에 필요하게 될 것이다.

Abstract

Nuclear materials accounting and verification in radiochemical processing facilities is essential, because it is the first possible time in the nuclear fuel cycle that plutonium can be measured. In these facilities, effective nuclear materials accounting systems and international safeguards inspections rely heavily upon nondestructive assay measurements. Therefore, it is important to

know whether the radiation-based nondestructive assay (NDA) techniques for Advanced Spent Fuel Management Process are applicable or not. As a result of reviewing the existing NDA techniques for nuclear material accounting, it was revealed that γ -ray spectrometry, x-ray fluorescence/densitometry and calorimetry techniques are not applicable to the advanced spent fuel management process because of the size of the measuring devices installed in a hot cell and the samples including some fission products. Therefore, the neutron technique is only applicable to this processing facility. The results reviewed in this study can be used to design a hot cell for the advanced spent fuel management process.

1. 서론

재처리시설은 최소한의 부가적인 작업으로 핵무기로 사용될 수 있는 핵분열성 물질을 분리할 수 있기 때문에 안전조치 관점에서 볼 때 매우 중요하다. 소규모 시설이라도 연간 수 킬로그램의 플루토늄을 생산할 수 있으므로 안전조치에 필요한 핵물질 계량이 필요하게 된다. 오늘날 상업용 재처리시설은 연간 1,000 톤까지 처리할 수 있으며, 7톤의 플루토늄을 생산하는 것으로 알려져 있다. 그러므로 시설내 모든 형태의 핵물질 재고량이 정확히 평가되어야 하며, 이러한 평가를 하기 위해서 비파괴 기술이 중요한 역할을 한다. 따라서 이러한 평가 기술은 안전조치 사찰자 및 시설운영자들이 종종 사용하고 있다. 재처리시설에 도착하는 사용후핵연료는 확인작업을 거친 후 수조내에 임시로 저장된다. 저장수조에서의 안전조치는 원자로의 저장조에서의 안전조치와 다를 바 없다. 핵물질은 구별될 수 있는 항목이지만 그량은 간접 측정에 의해서만 입증될 수 있는 원자로 계산으로 대략적으로 알 수 있다. 다음 단계는 재처리시설 처리입구(head end)에서 사용후핵연료집합체를 해체해서 연료봉을 토막내는 것이다. 이 시점에서 핵분열성 물질은 건전성을 잃어버리게 된다. 토막낸 핵연료물질은 핵분열성 물질을 분리하기 위해서 액상으로 용해된다. 이 시점은 재처리시설로 들어오는 플루토늄의량을 결정하기 위한 유일한 기회이다. 가장 어려운 점은 차폐체 내에서 고방사능의 핵연료 물질을 다루기 때문에 초기 단계의 화학적 분리과정에서 핵물질을 평가할 수 없다는 것이다. 그래서 재처리시설의 처리출구(output accountability tank)에서 계량이 이루어진다. 핵물질 분리 캠페인(separation campaign)에 대한 물질수지(material balance)를 수립하기 위해서, 입·출력지점 및 시설을 떠나는 모든 이동상황에서 시료채취가 이루어져야 한다. 이러한 것은 완전한 핵물질 계량자료를 제공하기 위해서 활용 가능한 많은 측정기술이 필요하게 된다는 것을 의미한다.[1] 본 검토에서는 기존 상업용 습식재처

리시설에서의 핵물질 계량에 대한 측정기술을 검토하고, 이를 바탕으로 이러한 기술이 일부 핵분열 생성물만을 분리하는 고온화학처리(pyrochemical process)방법을 사용하는 차세대관리공정에서도 활용 가능한지를 분석하였다.

2. SF 차세대관리공정 핵물질 측정 방안

사용후핵연료처리시설에서 핵물질(nuclear material : NM) 분석 방법은 핵연료 처리방법과 최종 생산물의 조성에 따라 다를 수 있다. 기존의 습식처리 방법에서는 다양한 분석방법이 적용되고 있으나 근래의 고온화학처리(pyrochemical processing) 방법에서는 매우 제한적이다. 그림1은 기존의 습식처리와 고온화학처리 방법의 차이점을 도식적으로 간략하게 보여준다. 이러한 처리 과정에서 사용되는 핵물질 분석 방법은 비파괴적인 방법과 파괴적인 방법으로 크게 구분된다.

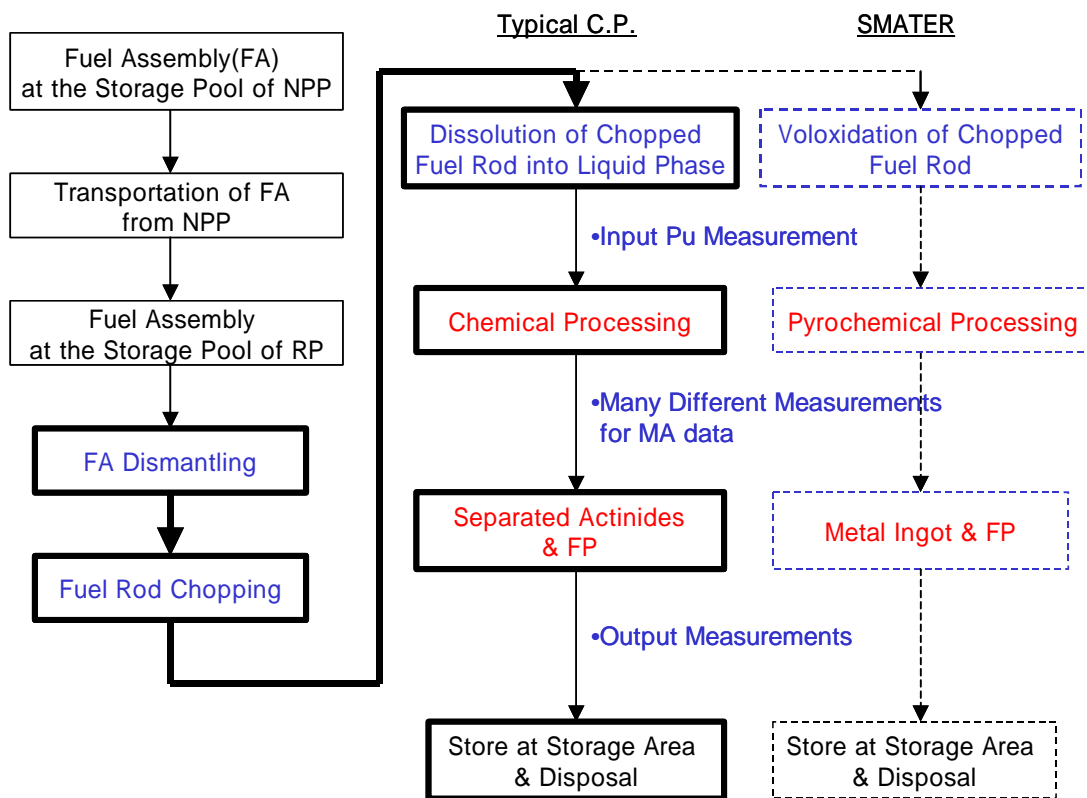


그림1. Simple Block Diagram for Measuring the Nuclear Materials in Typical Chemical Processing and Advanced Spent Fuel Management Process.

비파괴 측정 방법은 정량 및 정성 측정의 두 가지 형태로 통상 분리한다. 정량측

정에서는 조사연료의 특성, 연소도 또는 핵분열성 물질의 함량, 분리된 물질의 량 및 동위원소 존재비와 관련이 되며, 정성 측정은 조사연료가 정확한 방사성 물질임을 지시하는 신호를 갖고 있는가를 구별해 내는 것이다. 무게를 재는 것이 핵물질에 대한 가장 정확한 비파괴 측정 방법이지만 물리화학적 조성에 대한 값을 알아야 한다는 요구조건이 수반되는데, 이러한 조성은 핵물질 시료에 대한 파괴분석에 의해서 결정된다. 그러나 이러한 것은 연료물질, 화학적 조성 또는 불순물이 그 물질 내에서 변할 때 측정이 어렵게 되며, 파괴적인 분석측정에 의해서도 정확하게 결정될 수가 없다. 그래서 방사선에 근거한 NDA 측정이 선호되는 방법이며, 그 물질에 대한 순도 및 화학적 구성이 잘 알려지지 않을 때 가장 큰 효용성을 갖게 된다.

(1) RF 핵물질 계량 방법의 차세대관리공정 적용성

본 핵물질측정 방안분석에서는 기존의 사용후핵연료 처리시설(radiochemical processing facilities)에서의 중저준위 시료와 잔류 흡착물내 Pu 동위원소 조성 및 질량을 결정하기 위한 감마선분광분석, 용해시료내 U 및 Pu 농도를 결정하기 위한 X-선형광분석기술, 최종 생산물내 Pu 질량을 결정하기 위한 열량측정기술, 사용후핵연료/최종 생산물 및 폐기물내 Pu 질량을 결정하기 위한 중성자측정기술 등의 비파괴 평가방법을 검토하였으며, 이러한 평가방법 중 최종 생산물내에 일부 핵분열 생성물이 잔존하게 되는 차세대관리공정의 핵물질 계량에 적용될 수 있는지를 조사하였다. 또한 비파괴 방법의 적용성이 희박할 경우를 대비하여 현장 측정이 가능한 ICP-AES와 같은 파괴적인 방법도 검토하였다.

핵물질 비파괴평가 방법중 XRF/K-Edge 방법은 처리공정 input 및 output에서의 Pu 과 U 측정에 사용되고 있으나 실증시설 규모상 X-선발생장치의 설치공간이 부족하기 때문에 차세대관리 종합공정에서 활용하기 어렵다. 열량분석(calorimetry) 방법은 핵분열생성물과 핵물질이 완전히 분리된 시편에 대하여 핵물질의 량을 측정할 수 있기 때문에 차세대관리공정에서 사용할 수 없다. 감마선분광분석(gamma-ray spectrometry) 방법에 의한 Pu의 동위원소존재비 결정은 기존의 처리 방법에서는 모든 핵분열생성물이 제거되기 때문에 가능하다. 그러나 차세대관리공정에서는 일부 핵분열 생성물이 제거되지 않기 때문에 Actinide 계 동위원소에 대한 측정에 제한을 받게 된다. 사용후연료의 냉각시간이 10년 이상 길어지고, Cs, Sr, Ba, Y 등 일부 고방열성 핵분열생성물이 제거되기 때문에 Pu 동위원소 존재비 결정 가능성은 약간 높아지지만 Eu, Rh, Ce, Pr 등이 잔존하기 때문에 그 가능성은 불분명해진다. 정확한 가능성 시험은 차세대관리공정 금속전환체와 동일한 조성을 갖는 용해시편을 준비하고, Low Energy HPGe Detector를 사용하여 측정하므로써 확인할 수 있으나, 현재로서는 그와 같은 용해시편을 준비하기가 어렵기 때문에 차세대관리

종합공정 실증을 위한 핵물질 측정방안에서 제외시키는 것이 바람직하다. 자발중성자(passive neutron) 측정기술은 여러 나라에서 사용후핵연료, 화학처리 최종생성물 및 폐기물에서의 Pu량 측정에 사용되고 있으며, 핵분열생성물에 의한 영향을 크게 받지 않기 때문에 일부 장치제작상의 효율을 높인다면 차세대관리공정 핵물질 측정에 활용 가능성이 높아진다. 표1에서 보는바와 같이 이러한 주요 4가지 핵물질 NDA 방법의 특징으로부터 차세대관리공정 금속전환체에 활용할 수 있는 것은 현 시점에서는 자발중성자 측정기술 뿐이며, 감마선분광분석 방법은 그 가능성이 실험적으로 입증될 때까지는 배제될 수밖에 없다.

표1. 재처리시설 주요 핵물질 NDA 방법과 차세대관리공정에서의 사용 가능성

NDA Methods	Sample Type	Features	Application Feasibility in SMATER
XRF/K-Edge	•Solution (Undiluted)	•U and Pu Concentration •Undiluted Input Samples without any Prior Sample Treatment	•가 : 가 •X-
Calorimetry	•Solid •Liquid	•Total Mass of Pu • Most Precise for High Pu Concentration	• 가 가
γ-Spectrometry	•Solid •Liquid	•Pu Isotopic Abundance	• 가
Neutron Technique	•Solid	•Pu Mass in Spent Fuel, Product, and Waste (Metal, PuO ₂ Powder, MOX Powder)	• 가

최근에 미국의 Ames Lab.에서는 방사성 동위원소 분석을 현장에서 수행할 수 있는 새로운 ICP-AES 장치를 개발하여 상품화하고 있는 중이다. 이 방법의 특징은 분해능이 높고, 소형화하였기 때문에 현장에서 운영할 수 있으며, 분석비용이 저렴하고, 레이저를 이용하므로 시료채취가 쉽고, 신뢰성이 높다는 것이다. 그래서 이러한 장치가 상품화 된다면, 공정시료의 측정은 on-line 분석이 가능한 DA 방법을 적용하는 방법도 고려할 수 있다. 그러나 측정 빈도수가 크지 않을 경우 off-line의 DA 방법이 현실적이라고 볼 수 있다.

(2) 핵물질 계량시 감마선 측정법의 제한성

미국의 Canberra에서 개발한 U 및 Pu 동위원소 조성 측정기기인 "U-Pu InSpector"에 대한 설명자료(A Dedicated Instrument for Assessing the Isotopic Composition of Uranium and Plutonium)에서 그들은 사용후핵연료에 대한 핵물질 측정시 다음과 같은 제한성을 언급하고 있다. "U과 Pu는 아주 빈약한 감마 방출체이다. 이러한 감마선은 사용후핵연료내 핵분열생성물 및 방사화생성물과 같은 강한 감마 방출체가 존재한다면 쉽게 자연방사능(background) 속에 묻혀버릴 수 있다. 그러한 경우, U-Pu InSpector는 적절한 해결책이 아니다."

그러나 차세대관리공정의 금속전환체는 사용후핵연료의 경우와는 다소 차이점이 있다. Ba, Cs, Sr, Y 등 강한 감마 방출체가 차세대관리 공정과정에서 제거되는 반면, Eu, Rh, Ce, Pr 과 같은 감마 방출체는 최종 결과물인 금속전환체에 잔존하게 된다. 그렇지만 잔존하는 감마 방출체로 인한 자연방사능이 높아져 U 및 Pu에서 방출되는 감마선 피이크가 자연방사능 속에 묻혀버릴 확률이 높아지게 된다. 따라서 핵물질인 Pu 및 U에서 방출되는 피이크를 분석하여 핵물질을 계량하는 경우, 금속전환체내에 불순물로서 감마방출 핵분열생성물이 존재하면 감마선 피이크 분석시 오차가 커져 정밀도가 떨어지게 된다. 기존의 사용후핵연료 화학처리시설에서 분리된 순수한 Pu 동위원소 조성비 결정시 감마선분광분석법을 이용하여 1 % 이내의 정확도로 결정 가능하다고 보고하고 있다. 그러나 금속전환체내에 불순물로서 Eu, Rh, Ce, Pr 등과 같은 방사성 동위원소들이 존재할 경우, 실제 시편을 측정하지 않고는 측정 정확도를 평가하기는 매우 어렵다. 또한 표2에서와 같이 ORIGEN 코드 계산결과인 감마광자(photon) 방출량을 비교해 볼 때, 핵물질인 Pu는 사용후핵연료의 연소도 35,500 MWd/tU, 냉각시간 15년을 기준으로 할 경우, 2.06×10^{13} photons/sec이고, 금속전환체에 잔존하게될 가장 방출량이 많은 핵분열생성물인 Eu는 2.60×10^{14} photons/sec로서 10배 이상 감마 방출량이 많다는 것을 알 수 있다. 따라서 이러한 원소가 존재하는 상황에서 감마선분광분석법에 의한 핵물질 계량은 자연방사능 때문에 그 정확성을 평가하기 힘들게 된다.

핵물질 측정시 불순물에 의한 자연방사능의 영향을 평가하기 위하여 사용후핵연료 G23을 용해한 시료를 이용하였다. 핵물질과 핵분열생성물이 공존하는 사용후핵연료 용해시료 자체와 그 용해시료로부터 Pu를 분리한 시료, 그리고 방사능 세기가 서로 다른 감마체크싱선원(gamma checking source) Eu-152 및 Eu-154에 대하여 저에너지 HPGe 검출기를 이용하여 감마선 측정시험을 수행하였다. 측정 결과, 불순물 Eu의 방사능 변화에 따라 Pu에서 발생되는 감마선 피이크의 수가 달라진다는 것을 알 수 있었다. 즉, 순수한 Pu 시료와 방사능이 높은 Eu 선원을 함께 측정할 경우,

Pu 동위원소 피이크 수가 현저히 감소한다는 것을 확인하였다.

표2. 냉각시간에 따른 주요 악티나이드 및 핵분열생성물의 감마광자 방출량
(14x14 PWR 35,500 MWd/tU, 1 ton 기준)

Cooling Time	Photons/sec												
	Actinides					Fission Products							
	U	Np	Pu	Am	Cm	Non Separated				Separated			
						Ce	Eu	Pr	Rh	Ba	Cs	Sr	Y
10 years	8.32 x10 ¹⁰	1.69 X10 ¹²	2.16 X10 ¹³	4.17 X10 ¹³	1.30 X10 ¹³	1.86 X10 ¹²	4.06 X10 ¹⁴	8.67 X10 ¹²	3.99 X10 ¹³	3.39 X10 ¹⁵	1.07 X10 ¹⁵	4.13 X10 ¹⁴	2.54 X10 ¹⁵
15 years	6.50 X10 ¹⁰	1.69 X10 ¹²	2.06 X10 ¹³	5.49 X10 ¹³	1.07 X10 ¹³	1.97 X10 ¹⁰	2.60 X10 ¹⁴	9.20 X10 ¹⁰	1.19 X10 ¹²	3.01 X10 ¹⁵	5.64 X10 ¹⁴	3.66 X10 ¹⁴	2.25 X10 ¹⁵

3. 결론

사용후핵연료의 방사화학적 처리시설에서는 플루토늄이 취급되기 때문에 핵물질 계량은 필수적이다. 이러한 시설에서 효과적인 핵물질 계량 및 국제 핵사찰은 주로 비파괴 측정법에 의존하고 있다. 방사선에 근거한 비파괴 평가기술은 모든 공정물질 및 이전 측정자료 확인에 관한 계량자료를 시기 적절하게 제공하는 중요한 역할을 한다. 본 핵물질측정 방안분석에서는 기존의 습식처리시설에서의 중저준위 시료와 잔류 흡착물의 Pu 동위원소 및 질량을 결정하기 위한 감마선분광분석, 용해시료내 U 및 Pu 농도를 결정하기 위한 X-선형광분석기술, 최종 생산물내 Pu 질량을 결정하기 위한 열량측정기술, 사용후핵연료/최종 생산물 및 폐기물내 Pu 질량을 결정하기 위한 중성자측정기술 등의 비파괴 평가방법을 검토하였으며, 이러한 평가방법 중 최종 생산물내에 일부 핵분열 생성물이 잔존하게 되는 차세대관리공정의 핵물질 계량에 적용될 수 있는지를 조사하였다. 이러한 비파괴 측정방법을 검토한 결과, X-선형광분석, 열량측정방법, 감마선분광분석 방법은 차세대관리공정 실증시설의 규모 및 최종 생산물인 금속전환체내 일부 핵분열 생성물의 존재로 인해서 적용에 제한을 받게되는 것으로 평가되었다. 따라서 차세대관리공정 핵물질 측정방안으로서 비파괴적 방법은 현재로서는 중성자 측정기술의 적용성이 비교적 큰 것으로 나타났다. 이러한 핵물질 측정방안 분석결과는 앞으로 차세대관리공정 실증시설의 공정장치 배치와 더불어 핵물질 측정장치 설치공간 분배에 필요하게 될 것이다.

참고문헌

1. Wayne D. Ruhter et al., Nondestructive Assay Measurements Applied to Reprocessing Plants, Proceedings of the Tripartite Seminar on Nuclear Material Accounting and Control at Radiochemical Plants, Obninsk, Russia pp.135-136, 1998.

*본 연구가 과학기술부의 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었음.