

G23-J11 사용후핵연료봉 gap내 Cs, Sr과 I의 재고량 측정

The measurement of Inventory of Cs, Sr and I in the Gap of G23-J11 Spent Fuel Rod

김승수, 전관식, 김영복, 최종원, 강철형
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

사용후핵연료가 물과 접하였을 경우 먼저 침출되어 나오는 것으로 알려진 gap내 용해성 핵종의 재고량을 측정하였다. G23-J11 가압경수로 사용후핵연료 시편을 증류수로 침출시켜 침출시간에 따른 핵종의 유출률을 측정하였을 경우 핵종의 침출률이 많이 감소하는 기간까지 용출된 핵종의 양을 gap에서 누출되었다고 가정하였다. 그 결과 G23-J11의 gap에 존재하는 세슘, 스트론튬의 양은 각각 0.2%, 0.044%로, 요오드의 양은 0.2% 이하로 측정되었다.

Abstract

The inventories of soluble nuclides in the gap, known to be released rapidly from the spent fuel into water, were measured. When the specimen of G23-J11 spent PWR fuel rod was leached in distilled water, the release rates of nuclides were sloped as a function of leach time. The slop rapidly decreases at the initial stage and then sluggishly decreased. **And so, it is assumed that the gap inventory would be equal to the cumulative release fraction prior to reaching at the sluggish slope of the release rate.** Then, the gap inventories of cesium, strontium and iodine for G23-J11 were 0.2%, 0.044% and less than 0.2%, respectively.

1. 서 론

사용후핵연료로부터 핵종들의 용해는 ①펠릿간의 공간, 기공, 펠릿내의 큰 균열 등을

포함하는 연료와 피복재간의 공간 (gap)에 존재하는 핵종들의 용해, ②연료펠렛의 입계에 존재하는 핵종들의 용해, ③우라늄산화물 매트릭스의 용해 등 세 단계로 구분된다[1]. 이들 세 단계에서 ①이 가장 먼저 유출되고 그 다음으로는 ②, ③ 순으로 유출되는데, ③의 경우 다른 용해성 핵종들은 우라늄산화물의 산화율과 조화유출률에 지배되어 누출률이 상당히 느린 것으로 알려져 있다. 따라서 사용후핵연료로부터 핵종들의 초기 유출률을 얻기 위해서는 사용후핵연료봉내 gap에 존재하는 핵종들의 재고량이 파악되어야 할 것이다. 사용후핵연료의 처분시 고려되고 있는 주요 핵분열생성물들 중 gap에 존재하는 핵종은 비교적 반감기가 긴 Cs-135, I-129, Tc-99 등이 있으며, Sr-90은 매트릭스 용해의 표지핵종으로 알려져 있다[1].

세슘을 비롯한 휘발성 핵종의 순간적인 침출경향은 연소중의 온도, 즉 linear power rating(LPR)에 달려있다. 높은 LPR을 갖는 연료의 gap에 존재하는 핵종은 빨리 침출되는 반면에[2], 낮은 LPR인 연료는 시간이 경과함에 따라서 선형적으로 증가하여 90일정도 경과해야 크세논의 gap 재고량에 도달하는 경향을 나타내고 있다[3]. PWR 사용후핵연료로부터 핵분열기체의 방출량이 적은 연료 중 세슘의 gap 재고량은 핵분열기체방출량과 거의 같았으며, 핵분열기체의 방출량이 많은 연료 중 세슘의 gap 재고량은 핵분열기체 방출량의 1/4정도였다[4-5].

사용후핵연료내 세슘의 핵분열수율이 요오드에 비하여 10배정도 높기 때문에 생성된 요오드는 열역학적으로 안정하고 용해도가 비교적 높은 CsI로 존재하겠지만, 나머지 세슘은 용해도가 낮은 cesium uranate로 존재하거나[2-3], 다른 화학종으로 존재할 수도 있다고 보고되고 있다[6]. 한편, 요오드는 사용후핵연료를 진한 질산으로 용해할 경우 I₂로 휘발되므로[6-7] 용해과정에서 비휘발성 핵종인 IO₃⁻와 같은 비휘발성 화학종으로 산화시킬 필요가 있다.

2. 실험

0.6%		PWR		G23-J11을	
2 mm					가
					50
ml가				5 ml	0.2 μm
Cs - 137	Cs - 134	10		- spectrometry	

AMP(ammonium molybdophosphate) Sr
 I [8 - 9] LSC(Liquid Scintillation Counter),
 ICP - MS(Inductively Coupled Plasma
 - Mass Spectrometry)

Bio - Rad 0.3 g Sr - resin(Eichrom , SR - B50 - A)

0.05M 2.5 ml

8.0M 2.5 ml

가 8.0 M

15~30

1 ml 가

2.5 ml 8.0 M 4

0.05 M 2.5 ml 2 , 1 ml 1

1 ml 4.5 ml Ultra - gold XR scintillation

LSC 30 , 30

Y - 90

2.5 ml 20 ml vial

5 ml CCl₄ 140 mg NH₂OH·HCl vial

5 2 I₂ CCl₄

CCl₄

CCl₄ 5 ml 1.0x10⁻⁴ M NH₂OH·HCl 2 - 3

vial

0.1M KHSO₃ 1 ml 5

vial

180

I - 130

- SN05 10,000

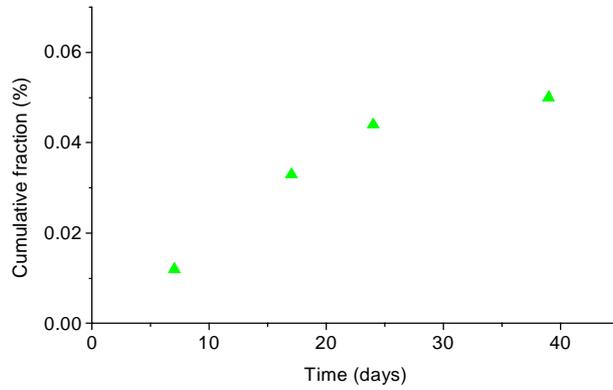


Fig. 2. The amount of strontium released from G23 - J11 with leaching time.

Gap, CCl₄, I - 129, - spectrometry
 2.0 Bq/ml I - 129
 IO₃⁻로 산화시켜 수용액으로 역추출한 다음
 gap

0.2%

4. 결론

gap G23 - J11
 0.15~0.2, 0.044%
 0.2%

1. W.J. Gray and D.M. Strachan, "UO₂ matrix dissolution rates and grain

- boundary inventories", Mat. Res. Soc. Symp. Proc., **212**, p.205, (1991).
2. R.S. Forsyth, "Spent fuel corrosion and dissolution", J. Nucl. Mat., **190**, p.3, (1992).
 3. S. Stroes-Gascoyne et al., "The relationship between gap inventories of stable Xenon, Cs - 137 and I - 129 in used CANDU fuel", Nucl. Tech., **77**, p.320, (1987).
 4. L.H. Johson and J.C. Tait, "Release of segregated nuclides from spent fuel", SKB - TR - 97 - 18, (1997).
 5. W.J. Gray and C.N. Wilson, "Spent fuel dissolution studies (FY 1991 to 1994)", PNL - 10540, (1995).
 6. C.T. Walker, C. Bagger and M. Mogensen, "Observations on the release of cesium from UO₂ fuel", J. Nucl. Mat., **240**, p.32, (1996).
 7. Tsutomu Saurai, et al., Nucl. Tech., **85**, 206 - 212, (1989).
 8. , , , " " , Analytical Science & Technology, **15(1)**, 1 - 6, (2002).
 9. S. Stroes-Gascoyne, et al., "Measurement of gap and grain-boundary inventories of I - 129 in used CANDU fuels", Mat. Res. Soc. Symp. Proc., **353**, 625 - 631, (1995).
 10. Gray, W. J., Wilson, C. N., " Spent fuel dissolution studies FY 1991 to 1994 " , PNL - 10540, Pacific Northwest Lab., Richland, WA (United States), (1995).
 11. Eichrom Technologies Inc., "Sample preparation using extraction chromatography". 8205 South Cass Avenue 111 Dorien, IL60561, USA, (2000).