

## Analysis of Fission Products on Irradiated Fuels using EPMA

### EPMA를 이용한 사용후핵연료의 연소도 측정에 관한 연구

Yang-Hong JUNG, Byung-Ok YOO, Wan-Ho OH, Hong-Gy LEE, Yong-Sun CHOO  
and Kwon-Pyo HONG

Korea Atomic Energy Research Institute, 130 Duck-Jin Dong, Yuseong-Gu, Daejeon

정양홍, 유병옥, 오완호, 이홍기, 주용선, 홍권표  
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

#### Abstract

The Methodology of burnup calculation with EPMA test set up in this study. The spent fuel from PWR nuclear power plant was used as specimen. This UO<sub>2</sub> fuel with 3.2% of enrichment had been irradiated up to 35,000 MWd/MTU(reference data). The burnup is very important factor for nuclear fuel to estimate all fuel behaviors in reactor. To measure amounts of fission products and actinides for the burnup calculation, chemical analysis (destructive method) has been used but it makes long experimental time and second radio-wastes. In this study, EPMA test was available to measure amount of fission products. Neodymium is able to be detected and quantified. It can be compared with the results from chemical analysis and ORIGEN-2 code calculation. Concentration of Nd from EPMA test showed good agreement with result of ORIGEN-2 code in the same burnup.

**Key words** : EPMA, burnup, Neodymium

#### 요 약

차폐형 성분분석기(Shielded EPMA)를 이용하여 한국형 경수로발전소에서 연소된 35,000 MWd/MTU, U-235의 농축도 3.2%인 UO<sub>2</sub> 사용후핵연료의 연소도 측정 방법을 제시하였다. 원자로의 출력과 핵연료의 특성 및 중성자속 분포 등 중요한 핵공학적 정보를 제공하는 사용후핵연료의 연소도는 U-235의 감손에 따른 무거운 핵종의 변화를 측정하거나 사용후핵연료 내에 생성된 핵분열생성물을 측정하는 방법 등이 있다. 이러한 방법은 비파괴시험으로도 하고 있으나 파괴시험인 화학적 분석방법이 보다 정확한 것으로 인식되고 있다. 그러나 화학분석법은 분석시간이 많이 걸리며, 방사선 시료의 취급으로 인한 시험자의 피폭 등의 어려움이 따른다. 화학적 분석방법에 의한 연소도 측정방법 대신 분석시료의 제작 및 분석시간이 화학적 분석방법에 비해 상당히 짧고, 또한 국부적인 연소도 측정이 요구되는 사고 핵연료나 고연소 핵연료의 위치별 연소도 측정이 가능한 EPMA를 사용한 연소도 측정기술이 개발되고 있다. 시험결과 ORIGEN2 코드로 계산한 연소도에 따른 Nd의 농도와 EPMA 분석에 의한 Nd의 농도는 거의 일치하였다. EPMA로 분석한 Nd의 조성과 ORIGEN-2 코드로 계산한 Nd의 조성 분포를 이용하여 사용후핵연료의 연소도를 예측하는 일차 실험식을 유도하였으며, 그 결과가 화학분석에 의한 연소도와 거의 일치함을 확인하였다.

## 1. 서론

연소도는 원자로의 출력과 핵연료의 특성 및 중성자속 분포 등 중요한 핵공학적 정보를 제공하는 사용후핵연료의 연소도 측정방법은 U-235의 감손에 따른 무거운 핵종의 변화를 측정하거나 사용후핵연료 내에 생성된 핵분열생성물을 측정하는 방법 등이 있다. 이러한 방법은 비파괴시험으로도 하고 있으나 파괴시험인 화학적 분석방법이 보다 정확한 것으로 인식되고 있다[1]. 조사된 핵연료를 질산에 녹여 각 핵분열 원소를 추출하고, 그 원소들을 다시 질량분석기로 핵종별 동위원소의 무게를 측정하여 연소도를 계산하는 방법으로 가장 정확한 연소도 측정 방법이기도 하지만, 오랜 분석시간과 높은 방사능으로 인한 사용후핵연료의 취급에 어려움뿐만 아니라 정교하고 복잡한 분리 및 추출과정을 필요로 하고, 특히 2차 방사성폐기물이 많이 발생하는 등의 문제점들이 있다.

이러한 문제점에 따라 화학분석법을 통한 사용후핵연료의 연소도 측정방법을 대신할 새로운 측정방법이 요구되고 있는데, 화학분석법에 대체할 방법으로 차폐형 성분분석기(Shielded EPMA)를 이용한 연소도 측정기술이 개발되고 있다. 차폐형 EPMA를 이용한 연소도 측정은 통상적으로 사용되는 습식 화학분석 방법보다 분석시간이 짧고, 고방사선 물질을 Glove box에서 각 핵종의 화학적 분리와 용액 처리 등의 복잡한 작업과정을 거치지 않고, 방사성 물질의 취급이 가능한 핫셀(hot cell)에서 시편의 제작 및 분석이 이루어지는 간단한 방법이라 제시하고 있다. 이에 대한 연구는 C.T. Walker[2]와 Shigeharu UKAI[3]가 플루토늄이 20 %이상 농축된 MOX(Mixed-Oxide) 연료를 사용하여 연소도 측정 가능성을 제시하였으나, 가압경수로 원자로(Pressurized Water Reactor. PWR) 핵연료 특히, 한국형 경수로 핵연료에 대한 연구는 전무한 실정이다.

Shigeharu UKA가 MOX 핵연료로 연소도를 측정한 방법은 EPMA 분해능 등의 문제로 연소도 측정에 이용되는 핵분열생성물중 Nd의 조성을 정량분석 방법이 아닌 정성분석방법인 Nd 핵종의 X-선의 세기(Intensity)만을 측정하여 핵연료 반경방향에 따른 연소도의 특성 관찰만을 하였을 뿐이다. 그러나 MOX 연료를 이용하여 고출력 핵연료의 연소도 측정 가능성을 제시한 선행연구자들은 사용후핵연료의 국부적인 연소도와 연료의 반경방향 연소도 분포 경향 등의 분석에 유용한 측정기술로 제안하고 있다. 그러나 아직까지 EPMA를 이용한 연소도 측정방법은 정확한 결과를 제시할 수준에 이르지 못하고 있어, 사용후핵연료의 국부적인 연소도와 연료의 반경방향 연소도 분포 경향 등을 제시하는 수준에 머물러 있다.

EPMA를 이용하여 연소도 측정이 실용화 된다면 분석시료의 제작 및 분석시간이 화학적 분석방법에 비해 상당히 짧고, 또한 국부적인 연소도 측정이 요구되는 사고 핵연료나 고연소 핵연료의 위치별 연소도 측정이 가능하기에 매우 유용한 연소도 측정방법으로 기대되고 있다. 그러나 알려진 바와 같이 핵분열생성물중 Nd의 함량이 워낙 미미하기에 정확한 조성을 분석하는 기술이 매우 중요하며, 또한 실험자의 경험과 실험기기의 조건 등에 따라 큰 오차 값을 나타낼 수 있기에 검증된 시험결과를 필요로 한다[4].

## 2. 실험 방법

### 2.1. 시편준비

고준위의 사용후핵연료를 취급할 수 있는 시설인 한국원자력연구소 조사제시시험시설(Irradiated Material Examination Facility)의 핫셀(hot cell)에서 경수로발전소에서 연소된 35,000 MWd/MTU, U-235의 농축도 3.2%인 UO<sub>2</sub> 사용후핵연료를 절단하여 EPMA 시편을 제작하였다. 고방사능의 피폭을 방지하기 위하여 미세하게 절단된 시편을 이송하여 전도성 레진으로 mounting 한 뒤 연마 및 에칭하였다. 시편의 제조는 silver paint(Leistsilver 2000 silver paint, TED PELLA, INC.)를 충분히 묻힌 시료를 진공기에 넣고 시료 내부로 silver paint가 충분히 침투하게 하여 시료의 전도성을

보강시켰다. 이는 시편 홀더에 충분히 묻힌 silver paint가 표면 활성화(capillary active)현상을 일으켜 시료 내부로 침투하여 들어가므로 시료 표면에 입사된 빔의 전도체 역할을 하는 것으로 믿어진다[5].

일반적으로 핵연료 시편의 분석시 시편에 입사된 전자빔의 집지를 위해 전도성 재료의 증착 작업이 되어야 하나 본 시험에서는 전도성 레진으로 mounting 된 시편에 silver paint를 덧칠하는 방법으로 진행하였다. 이 방법은 고 방사능을 띤 시료를 핫셀에서 증착해야 하는 어려운 작업 과정을 피하고도 비 전도성 물질에서 발생하는 charging 현상 없이 시료를 분석할 수 있는 편리한 방법이다. 분석용 시료는 Hot press mounting (150 °C, 6 bar) 장치로 mounting 한 후 연마하였다. 미세 연마한 시편은 침탄법 (Immersion)으로 에칭 하였다. 에칭 용액은 증류수, 질산, 불산, citric acid를 각각 163 ml, 72 ml, 1 ml, 3.4 g을 혼합한 것으로 상온에서 약 40 - 45초 에칭 하였다.

## 2.2. Electron Probe Micro Analyzer

본 시험에 사용한 EPMA (Electron Probe Micro Analyzer, SX-50R, CAMECA, Paris, France)는 방사능을 띤 조사 핵연료를 시험할 수 있도록 시편 장착 부위, WDS 및 Chamber 등을 납과 텅스텐으로 차폐시켰으며, 시편의 방사능 세기가 37 GBq까지 시험이 가능하도록 하였다. 핵분열생성물인 Nd, Mo, Ru, Rh 와 Pd 등을 분석하기 위한 인가전압 은 25 kV, 전류는 20 nA로 하였다. Nd의 분석은 WDS-1의 PET X-tal의 La X-ray line을 이용하였으며, Mo는 WDS 1의 PET X-tal의 K $\alpha$  X-ray line, Ru, Rh, Pd는 WDS-2의 PET X-tal의 La X-ray line을 이용하여 분석하였다.

## 3. 시험 결과 및 토의

### 3.1 연소도 측정방법 비교

EPMA를 이용하여 특정 핵종의 분석에 있어서 동위원소별로 분석은 할 수 없지만, 핵연료 연소도 지표핵종인 Nd(burn-up indicator)로 쓰이는 Nd의 총 함량 분석은 가능하다. 전자 빔을 이용한 EPMA 성분분석 방법은 원소의 조성을 알고 있는 표준시료에 대한 미지시료의 상대적인 조성을 획득하는 방법으로, 핵분열생성물과 같이 미량시료(trace)원소의 분석에 이용할 수 있다.

그러나 알려진 바와 같이 핵분열생성물의 조성이 워낙 미미하기에 특정 원소의 정확한 함량을 분석하는 기술이 매우 중요하며, 실험자의 경험과 실험기기의 조건 등에 따라 큰 오차 값을 나타낼 수 있기에 검증된 시험결과를 필요로 한다[6].

핵분열생성물 중 연소도의 지표핵종인 Nd-148을 이용하여 연소도를 계산하는 다음과 같은 식에서 Nd-148의 질량을 구해야 연소도를 계산할 수 있다.

$$Atom\%fission = \frac{Ft(148)}{N(U+Pu+...) + Ft(148)} \times 100 \quad \text{식(1)}$$

여기에서 Ft(148) : Nd-148 유효핵분열 수율에 대한 조사시료 중의  
Nd-148 원자수의 비 (N(Nd-148)/1.69)  
N (N+Pu) : 조사시료중의 U와 Pu 원자수의 합

EPMA로 Nd-148과 같이 동위원소별로 분석할 수 없고, 전체 Nd((143+ 144+145+146+148+150)의 조성만을 분석할 수 있기 때문에 위의 식을 이용하여 연소도를 분석하기가 불가능 하다.

그러나 Table 1과 같이 지표핵종인 Nd의 동위원소별 질량비에 따른 연소도와 오차를 실험적으로 측정된 문헌에 의하면 전체 Nd의 조성의 분석방법으로 측정된 연소도와 Nd-147에 의해 구해진 연소도와 차이가 크지 않다는 것을 알 수 있다. 실험에 의한 동위원소별 결과가 Table 1과 같이 문헌에 보고 되어 있으며[7],

Fig. 1에 보인바와 같이 조사된 핵연료를 질산에 녹여 각 핵분열 원소를 추출하고 그 원소들을 다시 질량분석법을 이용하여 동위원소들까지 질량화하여 핵분열수의 비를 알아내는 화학분석법은 시간적인 소모와 시료채취 등의 어려움이 다르기에 대체 방법을 모색할 필요성이 대두된다.

Table 1. Total burnup in Atom% calculated for difference Nd isotopes.

isotope	Atom% fission	difference
Nd-148	9.093	1.000
Nd-(145+ 146)	8.982	0.995
Nd-(143+ 144)	8.923	0.989
Nd-total	8.909	0.987

Table 2. Comparison of burnup determination by three measurements method.

methods	advantage	disadvantage
U-235 depletion method	<ul style="list-style-type: none"> <li>- low enrichment U-235(2~5%)</li> <li>- available for thermal reactor</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- not available for high enrichment, low burnup.</li> </ul>
Nd-148 determination method	<ul style="list-style-type: none"> <li>- accurate measurement (error 2%)</li> <li>- available to U, Pu mixed fuel</li> <li>- thermal fast reactor</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- long exp. time.</li> <li>- difficult to separate chemically.</li> <li>- not available for U-Th fuel</li> </ul>
Y-spectrometer (NDT)	<ul style="list-style-type: none"> <li>- short exp. time</li> <li>- burnup distribution for fuel rod</li> <li>- comparison of relative burnup</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- accuracy(error&gt; 5%)</li> <li>- chemically inspection is needed</li> </ul>

반면에 EPMA를 이용한 연소도 측정은 특정부위의 연료를 채취하여 마운팅 과정을 거치면 빠른 시간에 분석이 가능할 뿐만 아니라, 핵연료의 연소이력 중 가장 중요시 되는 연료봉의 반경방향 연소이력을 대단히 미세하게 분석할 수 있는 장점이 있다.

Table 2에 연소도를 측정하는 3가지 방법의 장점과 단점을 나타내었다. 감마분광분석(NDT)를 이용한 연소도 측정은 빠른 시간에 연료봉 전체의 연소도 분포를 확인할 수 있다는 장점과, 특히

비파괴 방법에 의한 측정 방법이 가능하기에 지금까지 가장 널리 사용되는 방법이기도 하나 결과가 부정확하다는 단점을 갖는다.

### 3.2 EPMA를 이용한 연소도 측정

Table 3은 EPMA를 이용한 사용후핵연료의 핵분열생성물 조성을 분석한 결과를 요약하였다. EPMA분석의 정확도를 비교하고자 Oak Ridge National Laboratory에서 개발한 ORIGIN-2 코드로 연소조건을 모사하여 제조된 비조사핵연료인 모의핵연료(Simulated Fuel)를 제조하여 습식 분석하였다. 동일한 시료를 사용하여 EPMA 분석 방법에 대한 기술을 배양하여 사용후핵연료에 적용하였다. Table 3에서 보는 바와 같이 모의핵연료 분석에서 화학적 습식 분석에 의한 결과와 EPMA를 이용한 분석결과가 거의 일치함을 알 수 있다.

그러나 사용후핵연료에 대한 핵분열생성물의 조성은 Table 3에서 보는바와 같이 상당한 차이를 갖는데, 이는 핵분열생성물의 특성 때문이다. 이미 기술한 바와 같이 30여종의 핵분열생성물 중 금속석출물이나 산화석출물의 형태로 존재하는 핵종과 고용되는 핵종 등으로 구분되는데 EPMA를 이용한 연소도 측정에 이용되는 Nd는 지표핵종(burn-up indicator)으로서 사용후핵연료에 균일하게 고용되어 있는 핵종이다.

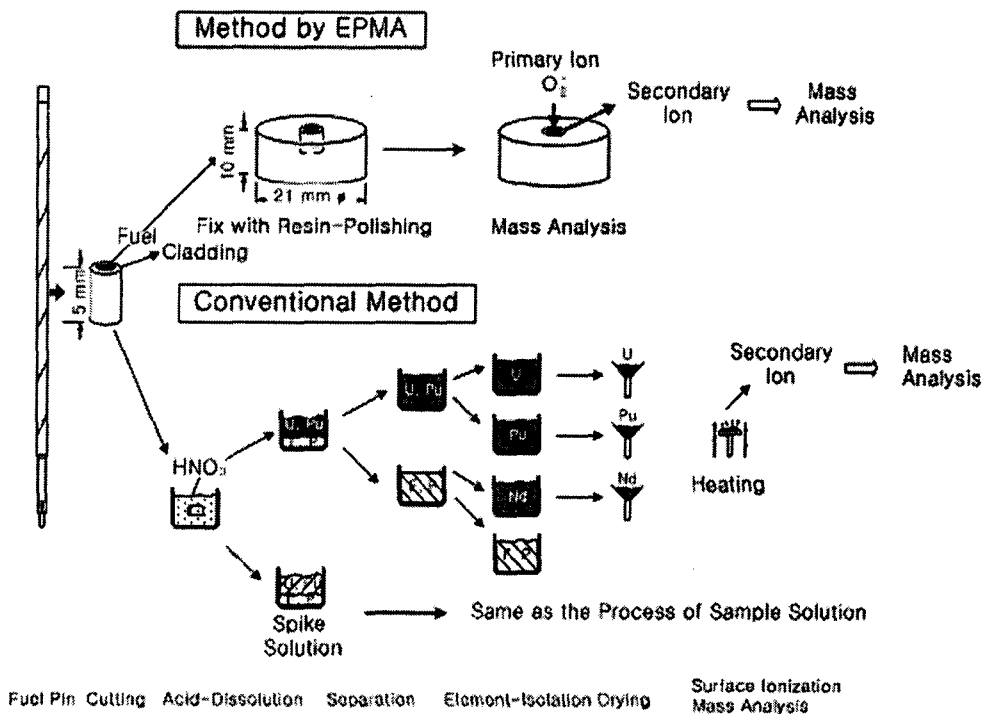


Fig. 1. Comparison of burnup measurement method using EPMA with chemical separation-mass analysis.

Table 4에서 Nd의 농도는 같은 농축도와 같은 연소도를 갖는 핵연료에서 조성이 거의 일치함을 확인할 수 있었다. 이는 Nd의 농도를 다양한 연소도를 갖는 사용후핵연료에서 정확하게 측정 가

능하다는 것을 의미한다. 또한 원자로에서 사고 발생시 연료봉의 국부적인 연소도 측정이 요구되지만, 현재의 연소도측정 방법으로는 시료의 채취 및 오랜 분석 기간 등으로 인하여 많은 어려움이 예상되지만, EPMA를 이용하여 Nd의 농도를 분석함으로써 상기의 문제점들을 해소할 수 있을 것이다.

Table 3. Composition the concentration between wet chemical analysis and EPMA (3.2% of enrichment and 35,000 MWd/MTU of burnup. wt.%)

fission product	SIMFUEL		KSNP *	DUPIC	research reactor
	chemical	EPMA			
Nd	0.480	0.476	0.446	0.42	1.908
Pd	0.028	0.187	0.314	0.02	0.299
Ru	0.239	0.269	0.385	0.22	0.963
Rh	0.073	0.049	-	0.06	0.131
Ba	0.203	0.218	0.374	-	0.560
Mo	0.449	0.392	0.319	0.27	0.27

\* KSNP : Korea Standard Nuclear Power

EPMA 시험으로 구한 Nd의 무게 분율을 이용하여 연소도를 구하기 위해선 중성자 플럭스를 알아야하고 UO<sub>2</sub>의 수밀도 그리고 핵분열 수율을 적용해야한다. 그런데 Nd 관련 동위원소 모두가 핵분열에서 생성된 것이 아니고 일부는 상위 핵종에서 붕괴되어 발생하는 경우와 중성자를 흡수하여 생성되는 경우가 있어서 이 모든 것을 고려하기가 어렵다. 아울러 핵분열 수율은 U-235, U-238, Pu-239 등 핵분열성 물질에 따라 서로 다르기 때문에 이들의 함량도 연소도에 따라 계산해야 하는 복잡성이 있다.

따라서 본 연구의 관심 핵종인 Nd 계열의 모든 동위원소들의 생성량을 연소도에 따라 그 거동을 알 수 있다. 코드에 내재되어 있는 기본계산에 적용된 주요 인자는 원자로에 분포되어있는 에너지에 따른 중성자속 분포, 핵분열을 일으킬 수 있는 확률(cross-section) 그리고 단위 핵분열시 생성되는 핵종들에 대한 발생 확률 등이 있다. 이러한 인자들은 연소기간과 함께 계산되어 최종적으로 알고자하는 시점에서 총 동위원소들의 정보를 보여주게 된다. 입력문으로서 적용물질의 조성 및 함량과 조사기간, 냉각기간 그리고 열출력이 필요하며 이 자료를 바탕으로 Nd의 연소도에 대한 거동을 그림 2에 나타내었다.

Fig. 2는 ORIGEN-2코드를 이용하여 연소도에 따른 Nd의 농도분포를 그린 그림이다. ORIGEN-2 코드는 3차원의 복잡한 구조 및 중성자속 분포를 갖고 있는 원자로를 대표할 수 있는 한 부분 또는 한 점(즉 평균치를 구하는 방법)으로 나타내어 그 부분 또는 점에서 핵분열에 의한 핵분열성 물질의 감소와 변화, 그리고 방사성 동위원소의 생성 및 붕괴를 계산하는 전산 코드인데, 주로 핵연료 주기의 관련된 계산과 연소도에 따른 핵연료 성분 및 특성 변화를 알아보는데 사용된다.

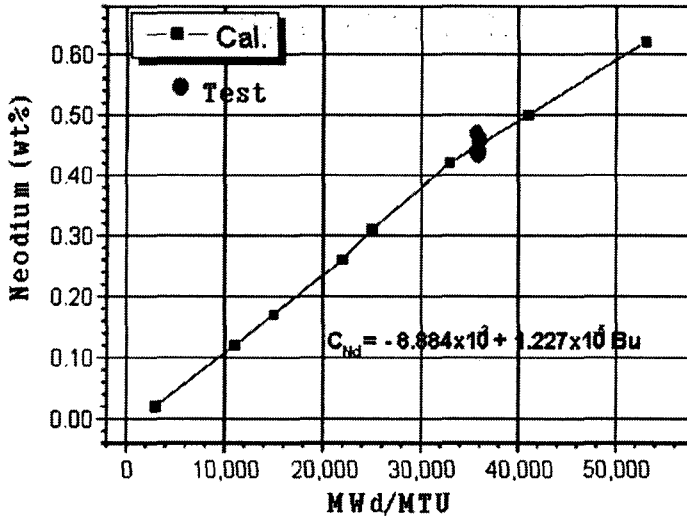


Fig. 2. Comparison between predicted and measured local Neodium concentrations as a function of the local burnup ; the threshold burnup was varied between 30,000 and 50,000 Mwd/MTU.

Fig. 2에서 연소도가 35,000 Mwd/MTU일 때 Nd 조성은 0.45 wt%임을 알 수 있다. 이 값은 Table 3에 나타난 동일 조건의 농축도와 연소도를 갖는 모의핵연료 및 한국형경수로 핵연료와 DUPIC 사용후핵연료의 실험 연료에서 EPMA로 분석한 결과와 거의 일치한다.

Table 3에 사용된 모의핵연료는  $UO_2$  핵연료와 표준 가압경수로(PWR)에만 해당된다. 이는 원자로 형태나 핵연료의 종류가 달라지면 에너지에 따른 중성자의 분포와 핵분열을 일으킬 수 있는 확률이 달라지기 때문이다. 선행 연구자인 C.T. Walker 등이 플루토늄이 20 %이상 농축된 MOX (Mixed-Oxide) 연료를 사용하여 EPMA를 이용한 연소도 측정 가능성을 제시하였으나, 제시된 결과를 경수로핵연료에 사용할 수 없음도 같은 이유 때문이다. 따라서 다른 금속핵연료나 Mox 핵연료 또는 원자로형태가 다른 조건에서는 ORIGEN-2의 입력변수를 다시 조정하여 적합한 모의핵연료를 만들 수 있으며, 본 연구와 같은 시험방법으로 연소도 측정 등에 관한 연구를 할 수 있다.

본 연구에서 사용된 핵연료는 바로 표준 가압경수로에서 나온  $UO_2$  핵연료이므로 그 안에 있는 Nd의 무게 분율을 통해 코드 계산값과 비교한 결과 약 35,000 Mwd/MTU 정도의 연소도임을 알 수 있었다. 따라서 Nd의 무게 분율을 실험적으로 알 수 있다면 이 식을 이용하여 대략적인 연소도를 알아낼 수 있다.

실험값으로서 여러 가지 다른 Nd의 무게분율을 지닌 시편을 구해서 보다 정밀성을 확인해야 하지만 조사된 핵연료를 대상으로 실험하기가 어려울 뿐더러 다양한 연소도를 지닌 핵연료 시료를 구하기가 어렵기 때문에 한 종류의 연소도를 갖는 핵연료만으로 Fig. 2에 나타난 결과가 그림과 같이 일치한다고 단정하기는 부족한 면이 없지 않다.

앞으로 다양한 연소도를 갖는 핵연료 시험으로 Nd의 농도를 측정함으로써 Fig. 2의 결과의 유용성이 검증된다면 EPMA를 이용한 사용후핵연료의 연소도 측정의 실용화를 이룰 수 있을 것으로 사료된다. 아울러 계산된 값들의 거동을 좀더 편의성을 가지기 위해 일반화된 식으로 나타내기 위해서 연소도에 따른 일차식으로 나타낼 수 있었다.

Fig. 2에 나타난 Nd의 조성의 실험값은 ORIGEN-2 코드로 계산한 결과에 근접하기에, Fig. 2를 최소자승법으로 피팅(fitting)하여 일차선형 방정식(linearly equation)을 아래와 같은 식으로 유도할 수 있다.

$$C_{Nd} = -8.884 \times 10^{-3} + 1.227 \times 10^{-5} Bu, (Y_{Nd} = 1.69)$$

식에서  $C_{Nd}$  = Concentration of Neodymium,

Bu = Burnup(MWd/MTU)

$Y_{Nd}$  = Nd Fission Yield of U-235

ORIGEN-2코드로 계산된 연소도와 실험 결과로부터 유도된 위의 실험식으로 한국형 경수로 핵연료의 반경방향 연소도 측정을 하였다.

반경방향 연소도 분포는 연료의 조사이력을 검증하는 중요한 기초 자료이며, 이 자료를 근거로 운전이력과 중성자속의 조절 등에 적절히 이용될 수 있다.

Fig. 3과 같은 한국형경수로 핵연료 시편의 중심부위에서 외면부위 방향으로 25 지점에 대해 Nd의 농도를 측정하였고, 측정된 Nd 농도로부터 위에서 유도된 실험식으로 연소도를 계산하여 Fig. 3과 같이 핵연료의 연소도 분포를 나타내었다.

MOX 연료를 사용하여 연소도 측정 가능성을 제시한 C.T. Walker와 Shigeharu UKAI의 문헌에 따르면 핵연료와 연소조건에 따라 다르지만, 연료의 외면부위가 국부적으로 중성자속(flux)이 많이 생성되는 외면부위 효과 때문에 상대적으로 연소도가 높게 나타난다고 알려져 있다. Fig. 3에서 연료의 중심부위보다 외면부위로 갈수록 Nd의 농도가 증가하고, 이에 따라 연소도가 증가하는 현상을 볼 수 있다. 또한 연소조건이 35,000 MWd/MTU인 한국경수로 핵연료에서 연료의 중심부위의 연소도는 20,000 MWd/MTU인 부위와 연료의 외면부위에는 국부적으로 70,000 MWd/MTU로 높은 연소도를 나타내고 있음을 알 수 있다. 이와 같은 부위별 연소 이력을 확인함으로써 원자로의 출력과 핵연료의 특성 및 중성자속 분포 등을 확인하는 중요 자료로 이용될 수 있으며, 또한 이 실험과정에서 얻어진 경험과 기술을 토대로 원자로 운전조건 및 새로운 핵연료의 개발에 활용될 수 있을 것이다.

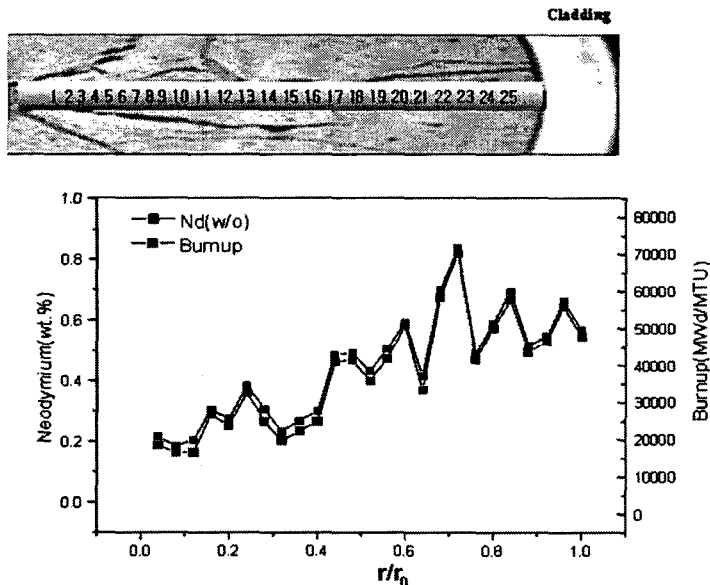


Fig. 3. Radial burnup and Nd concentration distribution measured by EPMA.



#### 4. 결 론

차폐형 성분분석기(Shielded EPMA)를 이용하여 한국형 경수로발전소에서 연소된 35,000 MWd/MTU, U-235의 농축도 3.2%인 UO<sub>2</sub> 사용후핵연료의 연소도 측정 방법을 제시하였다. ORIGEN2 코드로 계산한 연소도에 따른 Nd의 농도와 EPMA 분석에 의한 Nd의 농도는 거의 일치하였다. EPMA로 분석한 Nd의 조성과 ORIGEN2 코드로 계산한 Nd의 조성 분포를 이용하여 사용후핵연료의 연소도를 예측하는 다음과 같은 일차 실험식을 유도하였다.

$$C_{Nd} = -8.884 \times 10^{-3} + 1.227 \times 10^{-5} Bu, (Y_{Nd} = 1.69)$$

이 식을 실험에 사용한 3 종류의 사용후핵연료 Nd 농도 계산 결과와 비교한 결과 측정치와 거의 같은 값을 나타내었다. 비록 화학분석의 방법이 가장 정확하기는 하지만, 6개월 이상의 긴 분석기간, 높은 방사능으로 인한 시험자 피폭, 정교하고 복잡한 분리 및 추출과정을 피할 수 있고, 특히 2차 방사성폐기물의 발생을 억제할 수 있는 EPMA에 의한 사용후핵연료 연소도 측정이 가능하다고 판단된다.

#### 참 고 문 헌

1. M. E. Cunningham, M. D. Freshley, J. Nucl. Mater. 188 (1992) 19
2. Shigeharu UKAI, Ichiro UNNO., "Development of New Method for Burnup Measurement by SIMA", J. Nucl. JAERI, 528(1987) 54
3. C. T. Walker, T. Kameyama, J. Nucl. Mater. 188 (1992) 74
4. K. Une, M. Oguma, J. Nucl. Sci, Technol., 20 (1983) 844
5. C. Bagger, M. Mogensen., Uranium Dioxide properties and Nuclear Application, J. Nucl. Mater. 211 (1994) 11
6. K. Toshiaki, I. Kenichi, The effect of cleading restraint in fission gas release behavior, J. Nucl. Mater. 158 (1988) 64-70
7. J. S. Kim, S. H. Han., "Burnup Measurement of U3Si/Al by Chemical Methode", KAERI/GP-192/2002. 332.