

PWR 고연소핵연료 연소도와 U, Pu 및 Nd 동위원소 사이의 상관관계

김정석, 전영신, 박순달, 한선호, 김종구, 지광용
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지
 njskim1@kaeri.re.kr

사용후핵연료의 조사후 분석결과의 일관성을 확인하기 위해서는 핵연료 중의 무거운 원소와 핵분열생성물의 농도 및 각각의 동위원소비와 연소도 사이의 상관관계 연구가 필요하다. 본 연구에서는 국내 원전으로부터 연소된 몇 종의 PWR 고연소핵연료시료에 대하여 화학적 방법으로 연소도를 측정하고 질량분석 방법으로 병행하여 측정한 U, Pu 및 Nd 동위원소비 및 조성 사이의 상관관계를 상관관계 방법으로 측정결과를 검토하였다. 상관관계 연구를 위하여 공인된 Nd-148 방법으로 총연소도(Ft)를 측정하고 질량분석 방법으로 ^{235}U 핵분열에 의한 부분연소도(F5) 및 U 무게감손율[D5, $(W_5^0 - W_5) / W_5^0$]을 측정하였다(표 1). 핵연료시료 중의 U, Pu 및 Nd 원소와 각각의 동위원소 농도는 ^{233}U , ^{242}Pu 및 ^{150}Nd 을 스파이크로 사용하는 동위원소희석 질량분석법(isotope dilution mass spectrometry)으로 정량하였다. 화학적 방법으로 측정한 연소도와 질량분석에 의한 동위원소비 또는 조성을 토대로 몇 가지 상관관계를 나타내 보았으며, 이들 실험적 상관관계를 감마스캐닝에 의한 비파괴 연소도측정과 ORIGEN-S 핵종계산치를 이용한 계산에 의한 결과와 비교해 보았다.

표 1. 화학적 방법으로 측정한 몇가지 연소도 변수

Parameter	Sample						
	S-1	S-2	S-3	S-4	S-5	S-6	S-7
Ft (atom% fission)	6.3753	6.4015	5.1520	5.2492	6.1436	3.9612	4.6567
F5 (atom% fission)	3.2204	3.1806	2.8157	2.9268	2.9838	2.5050	2.7577
D5	1.1108	1.1221	1.2551	1.2076	1.1557	1.4401	1.2761

실험적으로 측정한 총연소도와 질량분석으로부터 구한 U과 Pu 동위원소조성 사이의 관계는 그림 1 및 2와 같이 나타났으며 양호한 직선성을 보여 주었다.

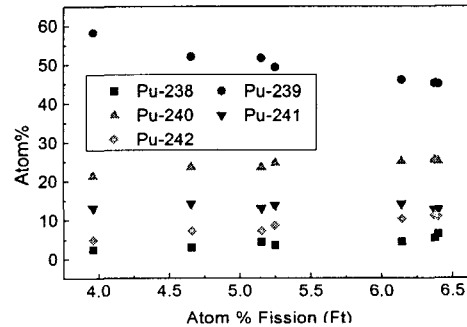
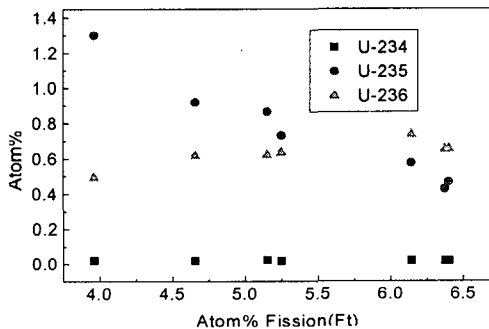


그림 1. 총연소도와 U 동위원소조성 사이 관계 그림 2. 총연소도와 Pu 동위원소조성 사이 관계

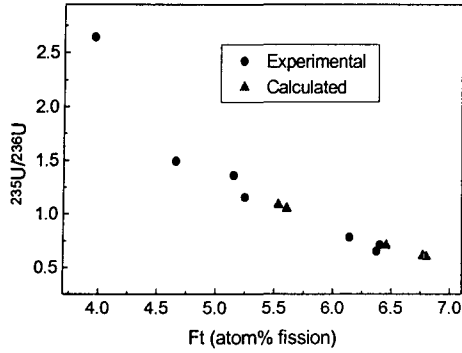


그림 3. 총연소도와 $^{235}\text{U}/^{236}\text{U}$ 비 사이 관계

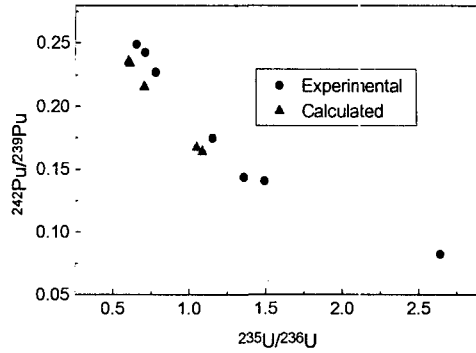


그림 4. $^{235}\text{U}/^{236}\text{U}$ 과 $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 비 사이 관계

그림 3에는 총연소도와 $^{235}\text{U}/^{236}\text{U}$ 비, 그림 4에는 $^{235}\text{U}/^{236}\text{U}$ 과 $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 비 사이의 상관관계를 나타내었다. 그림 3의 분포는 총연소도와 D5를 이용한 상관관계와 동일한 경향을 보였으며 계산치를 이용한 결과와 잘 일치하였다. $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 과 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 사이의 상관관계, D5와 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 사이의 상관관계 또한 계산치를 이용한 결과와 잘 일치하였다. 그림 4는 측정된 U와 Pu 동위원소간 상관관계를 나타내며 총연소도와 $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 비를 이용한 상관관계와 동일한 경향을 보여 주었다. 계산치를 이용한 결과와 같은 기울기를 보이거나 약간 낮은 값을 나타내었다. 측정 Pu 동위원소간 상호일치는 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 와 $^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ 및 $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 와 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 비 사이의 상관관계로부터 확인할 수 있었으며 계산치에 의한 결과와 비교적 잘 일치하였다. 반면 Pu/U 비와 U 동위원소조성 및 연소도와와의 상관관계는 계산치와 상당한 차이를 보였으며 이에 대한 많은 검토가 요구되었다.

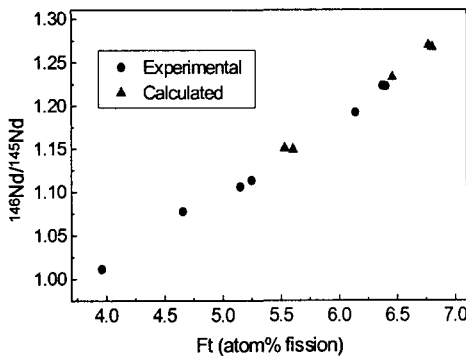


그림 5. 총연소도와 $^{146}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$ 비 사이 관계

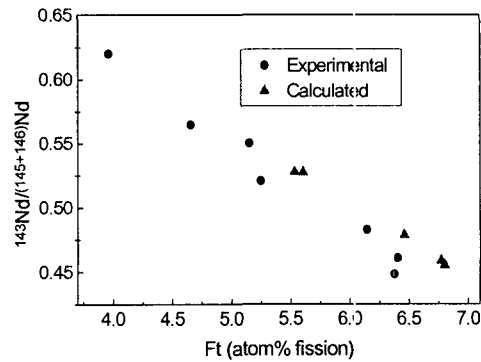


그림 6. 총연소도와 $^{143}\text{Nd}/(^{145}+^{146})\text{Nd}$ 비 사이 관계

그림 5와 6에는 연소도측정 지표원소로 이용되는 Nd 동위원소들과 측정된 연소도와의 상관관계를 나타내었다. 두 상관관계 모두 계산에 의한 계산치에 의한 결과와 잘 일치하였다. 이 결과는 사용후핵연료시료 연소도측정을 위하여 화학적 분리과정으로 분리한 Nd이 동중위소(Ce 및 Sm)들의 간섭없이 순수하게 분리되었음을 보여주고 있다.

차후 많은 고연소핵연료시료에 대하여 화학적 방법으로 연소도를 측정하고 동위원소 상관관계 연구를 병행수행하여 측정결과에 대한 검토와 분석방법의 신뢰도를 높여야 할 것으로 판단된다. 이들 결과들은 조사후시험 결과의 예측과 검증, 원자로의 안전운전에 대한 기초자료로 활용될 수 있으며, 화학적 연소도측정에서의 핵연료시료의 용해 및 전처리 방법의 검토와 개선, 질량분석을 위한 시료전처리 및 측정, 스파이크용액의 사용 등과 관련하여 정보를 제공할 것으로 기대된다.