

동위원소희석 질량분석법을 이용한 고연소 및 건식공정 핵연료 중 세슘 동위원소 정량

김정석, 전영신, 박순달, 김종구

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

niskim1@kaeri.re.kr

PWR 고연소 및 건식공정 재가공 핵연료내 세슘 및 성분동위원소들을 동위원소희석 질량분석법 (isotope dilution mass spectrometry, IDMS)으로 정량하였다. 조사된 핵연료시료를 화학실험실에서 질산(1+1) 용액으로 용해 및 희석하여 분석시료를 준비하였다. 시료 및 스파이크 (^{133}Cs)를 첨가한 시료 중의 세슘을 2 단계 음이온교환 크로마토그래피를 이용하여 분리하였다. 시료 및 천연연료로부터의 동중원소(Ba 등)에 의한 간섭을 제거하기 위하여 추가로 양이온교환 크로마토그래피를 이용하여 정제하였다. 최종 분리한 용액을 열이온화 질량분석기 (thermal ionization mass spectrometer, TIMS)로 각각의 성분동위원소 (^{133}Cs , ^{134}Cs , ^{135}Cs 및 ^{137}Cs) 조성을 측정하였다. 시료 및 스파이크 첨가시료의 측정결과를 이용하여 동위원소희석 질량분석법으로 시료 중의 총 세슘 및 각각의 성분동위원소 함유량을 정량하였다. 정량결과를 ORIGEN code를 이용한 핵연료시료 중의 세슘 동위원소 함유량 계산치와 비교하였다. 측정된 동위원소 조성비 ($^{133}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 및 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$)를 이용하여 네오디뮴 지표원소법으로 측정된 연소도 및 연소도변수와의 상관관계를 검토하였다.

표 1. 동위원소희석 질량분석법에 의한 PWR 고연소 및 건식공정 핵연료 중 Cs 함유량

Isotope	Cs(mg/g-fuel)					
	K-1	K-2	K-4	D3-1	D4-1	D4-3
Cs-133	1.6647	1.6765	1.3976	0.1494	0.2966	0.1375
Cs-134	0.0725	0.0700	0.0474	0.0004	0.0019	0.0004
Cs-135	0.5481	0.5798	0.5507	0.0329	0.0567	0.0177
Cs-137	1.8468	1.8779	1.4591	0.1323	0.2679	0.1231
Total	4.1321	4.2042	3.4548	0.3150	0.6231	0.2787

표 2. 질량분석에 의한 PWR 고연소핵연료 중 Cs 동위원소 원자수비

Atom Ratio	K-1		K-2		K-4	
	Meas.	Calc.	Meas.	Calc.	Meas.	Calc.
Cs-134/Cs-137	0.0401	0.0380	0.0381	0.0379	0.0332	0.0319
Cs-133/Cs-137	0.9285	0.9352	0.9196	0.9347	0.9867	0.9919

Calc. : ORIGEN data로부터 계산