

## Nd-148 방법에 의한 화학적 연소도측정 불확도 산출

김정석, 전영신, 서무열, 박순달, 한선호, 지광용  
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지  
[niskim1@kaeri.re.kr](mailto:niskim1@kaeri.re.kr)

핵연료 연소 중에 생성된 핵분열생성물  $^{148}\text{Nd}$ 은 연소도 지표원소로서의 조건을 대부분 만족하고 있으므로 이를 기초로 한 화학적 연소도측정기술(Nd-148 방법)이 널리 이용되고 있다. 화학적 연소도측정기술은 핵연료시료 무게측정, 용해 및 화학적 전처리, 질량분석 등 수행에 따른 여러가지 불확도 요소를 내포하고 있다. 따라서 연소도측정결과의 신뢰도를 높이고 오차요인별 검토를 위한 체계적인 불확도측정이 필요하다. 본 연구에서는 국내 원전으로부터 연소된 PWR 고연소핵연료시료에 대하여 화학적 방법으로 연소도를 측정하고 병행하여 측정단계별 표준 및 합성표준 불확도를 구해 보았다. 60개 성분요소에 대한 상대표준불확도를 적용하여 오차파급형식으로 연소도측정 합성표준불확도와 확장불확도를 구해 보았다. 고연소핵연료시료의 연소도측정 관련 상대확장불확도는 2.37%이었으며 총연소도(atom% fission)는  $5.2492 \pm 0.1246$ 으로 나타났다.

### 1. 핵연료시료 준비에 따른 불확도

화학핫셀로 이송된 핵연료시료는 시료 무게측정 후, 용해, 희석 및 채취과정에 의하여 시료가 준비되며 단계별로 무게측정이 이루어 지므로 이에 대한 저울 및 분동과 관련한 불확도를 산출하였다.

### 2. 표준용액 제조에 따른 불확도

IDMS 방법에 의한 스파이크용액의 표정은 사용한 표준용액의 정확도에 의하여 좌우된다. U 표준물( $\text{U}_3\text{O}_8$ , NBL CRM 129)과 Nd 표준용액(SPEX사)을 이용한 표준용액 제조 및 IDMS 방법에 의한 표정에 따른 불확도를 산출하였다(표 1).

### 3. 스파이크용액 제조 및 첨가에 따른 불확도

IRMM산  $^{242}\text{Pu}$  표준용액을 이용하여 스파이크용액 제조에 따른 불확도를 산출하였다. 연소도측정을 위하여 준비한 스파이크용액( $^{233}\text{U}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{150}\text{Nd}$ )의 첨가 및 균질화에 따른 불확도를 산출하였다.

### 4. 질량분석 및 연소도(atom% fission) 계산에 따른 불확도

핵연료시료 및 스파이크첨가 핵연료시료는 분리-수집-농축과정을 거친 후 질량분석에 의한 동위원소비를 측정한다. U, Pu 및 Nd 각각에 대한 동위원소비를 이용하여 ASTM 계산방식에 의거 연소도를 계산한다. 계산과정에서의 시료 당 U 및 Pu 원자수 측정에 따른 불확도, 시료 당 핵분열수 측정에 따른 불확도(특히, 스파이크용액 중  $^{150}\text{Nd}$  원자수 측정, 스파이크첨가 핵연료시료 중  $^{150}\text{Nd}/^{148}\text{Nd}$  측정 및 보정), 그리고 각 핵분열성원소 부분핵분열수율로부터  $^{148}\text{Nd}$  유효핵분열수율 측정에 따른 불확도를 산출하였다(표 2 및 3). 각 단계별로 산출한 합성표준불확도를 비교하였을 때 유효핵분열수율 측정에 따른 불확도가 가장 높은 값을 나타내었다. 전 과정의 각 단계별로 구한 60개 성분요소에 대한 상대표준불확도를 적용하여 오차파급 형식으로 연소도측정 합성표준불

확도를 산출하였다. 산출된 합성표준불확도에 확장계수 2를 곱하여 확장불확도를 구하였다.

표 1. 천연 Nd 표준용액과  $^{150}\text{Nd}$  스파이크 혼합물의 동위원소비에 대한 불확도

Ratio	No. of Scans	Mean	Std. Dev.	Std. Uncertainty	Rel. Std. Uncertainty
$^{142}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$	10	1.135967392	0.000917227	$2.90 \times 10^{-4}$	$2.55 \times 10^{-4}$
$^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$	10	0.509419825	0.000808924	$2.56 \times 10^{-4}$	$5.02 \times 10^{-4}$
$^{145}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$	10	0.349800181	0.000496426	$1.57 \times 10^{-4}$	$4.49 \times 10^{-4}$
$^{146}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$	10	0.726794496	0.001055741	$3.34 \times 10^{-4}$	$4.59 \times 10^{-4}$
$^{148}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$	10	0.246906512	0.000491158	$1.55 \times 10^{-4}$	$6.29 \times 10^{-4}$
$^{150}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$	10	0.982615900	0.000879675	$2.78 \times 10^{-4}$	$2.83 \times 10^{-4}$

Comb. std. uncertainty [ $U_C(Nd_{ST+SP})$ ] :  $1.10 \times 10^{-3}$

표 2. 핵분열성원소 부분핵분열수율에 대한 불확도

Component	Fractional Fission Yield	Std. Uncertainty	Rel. Std. Uncertainty
$^{235}\text{U}(t)$	0.0167312±0.35%	$2.99 \times 10^{-5}$	$1.79 \times 10^{-3}$
$^{239}\text{Pu}(t)$	0.016422±0.5%	$4.19 \times 10^{-5}$	$2.55 \times 10^{-3}$
$^{241}\text{Pu}(t)$	0.0193209±0.7%	$6.90 \times 10^{-5}$	$3.57 \times 10^{-3}$
$^{238}\text{U}(f)$	0.0209416±1.0%	$1.07 \times 10^{-5}$	$5.10 \times 10^{-3}$

t : thermal fission, f : fast fission

Comb. std. uncertainty [ $U_C(FY_{fract})$ ] :  $1.36 \times 10^{-2}$

표 3. 연소도측정 단계별 합성표준불확도

No.	Step	Com. Std. Uncertainty
1	Sample weighing in hot cell	$4.12 \times 10^{-5}$
2	Preparation of U standard solution	$4.71 \times 10^{-4}$
3	Preparation of Nd standard solution	$4.40 \times 10^{-4}$
4	Preparation of $^{242}\text{Pu}$ spike solution	$8.62 \times 10^{-4}$
5	Sampling/spiking of fuel and triple spike solution	$9.90 \times 10^{-5}$
6	Determination of U atoms per fuel sample	$1.89 \times 10^{-5}$
7	Determination of Pu atoms per fuel sample	$2.92 \times 10^{-3}$
8	Determination of $^{150}\text{Nd}$ atoms in spike	$1.15 \times 10^{-3}$
9	Determination of ratio of F.P $^{148}\text{Nd}$ to spike $^{150}\text{Nd}$	$5.52 \times 10^{-3}$
10	Determination of effective fission yield of $^{148}\text{Nd}$	$6.20 \times 10^{-2}$