

연소도와 무거운 동위원소 상관관계를 이용한 PWR 고연소핵연료 분석

김정석, 전영신, 박순달, 한선호, 하영경, 송규석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)

niskiml@kaeri.re.kr

1. 서론

조사후핵연료 분석결과와 일관성을 확인하기 위하여 무거운원소와 핵분열생성물의 농도 및 동위원소조성 등의 핵연료변수와 연소도 사이의 상관관계 연구가 이루어지고 있다. 이러한 상관관계 연구는 원자로핵연료의 확인, 연소도 및 Pu 생성량의 예측, safeguards 목적 등에 이용되고 있다. 동위원소 상관관계는 3가지 부류, 즉, 무거운 동위원소 및 원소에 기초한 상관관계, 안정한 핵분열생성물에 기초한 상관관계, 그리고 방사성 핵분열생성물에 기초한 상관관계로 나누고 있다. 따라서 상관관계 연구를 위한 변수로는 여러 형태의 동위원소 및 원소의 조성 또는 상대비, 총 및 부분 연소도, 핵분열성 동위원소 및 원소의 감손과 생성량 등이 이용되고 있다.

본 연구에서는 사용후핵연료(고연소 PWR) 시료의 연소도를 Nd 지표원소법으로 측정하기 위하여 시료 및 스파이크(^{233}U , ^{242}Pu , ^{150}Nd)를 첨가한 시료로부터 각각의 원소를 순수하게 분리하고 질량분석하였다. 무거운 동위원소 및 원소에 기초한 상관관계를 이용하여 교차분석하기 위하여 측정 동위원소비를 바탕으로 동위원소희석 질량분석법으로 우라늄과 플루토늄을 정량하고 몇가지 핵연료변수를 산출하였다. 핵연료시료를 연소된 원전별로 나누어 분류하고, 분류된 시료들에 대해 측정된 결과를 모아 상관관계를 나타내었다. 우라늄 동위원소간 상관관계, 플루토늄 동위원소간 상관관계, 우라늄과 플루토늄 동위원소간 상관관계, 우라늄 동위원소와 연소도간 상관관계, 그리고 플루토늄 동위원소와 연소도간 상관관계를 여러가지 방식으로 분석해 보았다. 몇가지 상관관계에 대해 ORIGEN-S 계산치를 이용하여 구한 결과와 비교해 보았다.

2. 실험 및 결과

본 연구의 연소도측정을 위한 제반 절차와 질량분석은 당 연구실에서 확립하여 핵연료 화학 분석에 적용하는 과정에 준하여 수행하였다. U 동위원소간 상관관계로서, 그림 1에는 원전 A로부터의 핵연료시료에 대하여 ^{235}U 의 무게감손율 $[D_5, W_5^0/(W_5^0 - W_5)]$ 에 대한 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 동위원소비의 관계를 나타내었으며, 직선성을 확인하였다. Pu 동위원소간 상관관계로서, 그림 2에는 원전 B로부터의 핵연료시료에 대하여 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 와 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 비사이의 관계를 Code 계산치를 이용한 결과와 함께 나타내었다. 그림 3에는 원전 A, B, C로부터의 핵연료시료에 대하여 $^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ 와 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 비사이의 관계를 나타내었으며, 정확한 붕괴보정은 생략하였으나 비슷한 양상을 보였다. U-Pu 동위원소간 상관관계로서, 그림 4에는 원전 C로부터의 핵연료시료에 대하여 $(^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu})/(^{236}\text{U}/^{238}\text{U})$ 비와 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 비사이의 관계를 나타내었으며, 직선성을 확인하였다. 그림 5에는 U 동위원소와 연소도간 상관관계로서, 원전 A로부터의 핵연료시료에 대하여 $^{235}\text{U}/^{236}\text{U}$ 동위원소비와 Nd-148 방법으로 측정한 총연소도(F_T) 및 우라늄 질량분석결과만을 이용하여 측정된 부분연소도(F_5 , ^{235}U 핵분열에 의한 연소도)와의 관계를 나타내었으며, 전형적인 직선성을 확인하였다. 그림 6에는 Pu 동위원소와 연소도간 상관관계로서, 원전 B로부터의 핵연료시료에 대하여 Pu 동위원소분율을 나타내는 $100 - ^{239}\text{Pu}$ atom%과 총연소도와와의 관계를 나타내었다. 표 1에는 상관관계연구에 많이 이용되고 있는 Pu/U 질량비를 몇 개의 시료에 대하여 측정된 결과를 동위원소별로 나누어 나타내었으며, 총량비의 경우 1.198-1.335% 범위이었다 .

3. 결론

동위원소희석 질량분석법에 기초한 Nd 지표원소법으로 고연소핵연료의 연소도측정과 동시에 산출한 무거운 동위원소 조성비를 이용하여 상관관계 연구수행이 가능한 것을 확인하였다. 연소조건 차이를 고려하여 연소된 원전별로 시료를 분류하여 상관관계 연구를 수행하는 것이 보다 효과적이었다. 저연소된 핵연료보다 고연소된 핵연료에 대하여 무거운 동위원소의 상관관계에서의 직선성에 대한 편차가 컸으며, 상관관계에 따른 폭넓은 연구가 필요하였다. 보다 정확한 동위원소

조성 산출을 위하여 성분 동위원소 전반에 대한 질량편차 바이아스 보정이 필요하며, 시료전처리 및 질량분석 수행과정 중에 주변환경으로부터의 오염에 세심한 주의가 필요한 것으로 판단되었다.

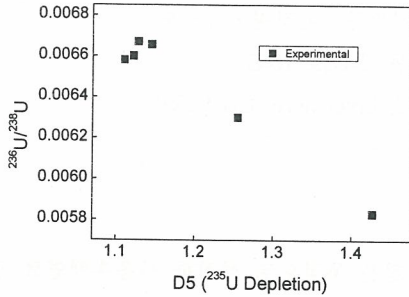


그림 1. ^{235}U 감손율과 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 비와의 관계

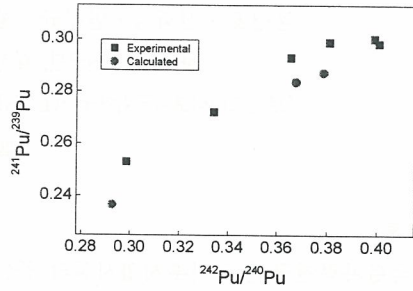


그림 2. $^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ 비와 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 비와의 관계

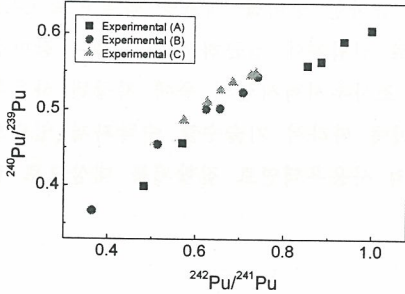


그림 3. $^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ 비와 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 비와의 관계

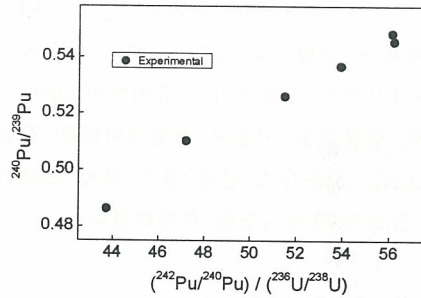


그림 4. $(^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu})/(^{236}\text{U}/^{238}\text{U})$ 비와 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 비와의 관계

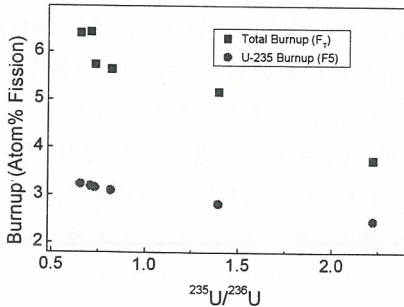


그림 5. $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 비와 총 및 부분 연소도의 관계

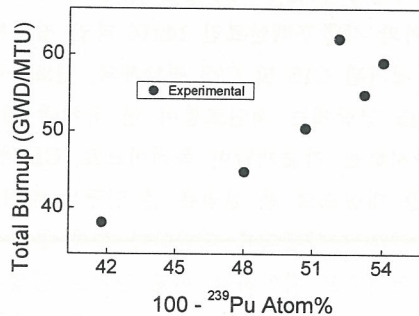


그림 6. $100 - ^{239}\text{Pu}$ Atom%와 총연소도의 관계

표 1. 고연소 PWR 핵연료시료에 대한 Pu/U 질량비 측정

Mass ratio	Sample			
	S-1	S-2	S-3	S-4
$^{238}\text{Pu}/\text{U}$	0.00041	0.00051	0.00057	0.00050
$^{239}\text{Pu}/\text{U}$	0.00644	0.00655	0.00559	0.00561
$^{240}\text{Pu}/\text{U}$	0.00315	0.00336	0.00306	0.00302
$^{241}\text{Pu}/\text{U}$	0.00164	0.00180	0.00169	0.00169
$^{242}\text{Pu}/\text{U}$	0.00095	0.00113	0.00123	0.00116
Pu-total/U	0.01259	0.01335	0.01215	0.01198