

UO₂-Gd₂O₃ 사용후핵연료 연소도측정 및 U, Pu, Nd 동위원소 정량

김정석, 전영신, 박순달, 하영경, 송규석
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
 niskim1@kaeri.re.kr

1. 서론

핵연료의 연소도 측정결과는 핵연료의 연소결과 일어나는 여러 현상, 즉, 입자성장, 팽윤 및 핵분열기체발생 등의 핵연료특성, 원자로출력 및 중성자속분포 등에 관한 중요한 핵공학적 정보를 제공하므로써 핵연료설계 및 노심설계 code의 검증과 개량, 연소도와 연료봉변수와의 상관관계, safeguards, 재처리 및 저장시설의 차폐, 사용후핵연료의 최종처분 등에 필수적인 기초자료를 제공한다. 사용후핵연료의 조사후시험 결과의 일관성을 확인하기 위하여 무거운원소나 핵분열생성물 및 각각의 동위원소들의 농도와 연소도 같은 핵연료변수 사이의 상관관계 연구가 이루어지고 있다. 이런 상관관계는 핵연료의 확인, 연소도와 Pu 생성량의 예측 및 safeguards 목적 등으로 활용되고 있다.

본 연구에서는 고리 3호기 PWR 핵연료집합체 중의 UO₂ 핵연료봉으로부터 취한 핵연료시료와 일정량의 Gd를 함유하는 UO₂-Gd₂O₃ 핵연료봉으로부터 취한 핵연료시료에 대해 화학적 방법인 Nd-148 방법으로 연소도를 측정하였다. 2종의 핵연료에 대해 동일하게 당 연구실에서 확립한 3중 스파이크(²³³U, ²⁴²Pu, ¹⁵⁰Nd)를 이용한 동위원소희석 질량분석법을 적용하였다. UO₂-Gd₂O₃ 핵연료의 연소도측정을 위한 화학적 분리과정에서 다량의 Gd 함유에 따른 간섭효과 여부를 검토하였다. 연소도측정 결과에 대한 신뢰도 확인을 위하여 연소도측정과 병행하여 측정 한 U, Pu 및 Nd 동위원소들의 조성을 분석하고 상관관계를 검토해 보았다.

2. 실험 및 결과

2.1 시료 준비

고리 3호기에서 조사된 UO₂-Gd₂O₃ 및 UO₂ 핵연료를 연소도측정을 위하여 당 연구실 화학실험실로 이송하였다. HNO₃(1+1) 용액으로 16 시간 용해시키고 희석과정을 거쳐 분석시료를 준비한 후

공압식 시료이송시스템을 이용하여 glove box로 이송하였다.

2.2 화학적 분리

본 핵연료시료 분석을 위한 전반적인 과정은 Fig. 1과 같다. 화학적 분리는 1종의 핵연료시료에 2개의 분석시료를 준비하여 하나는 스파이크를 첨가하지 않은 시료(unsiked)를 준비하고, 다른 하나는 3중 스파이크를 첨가한 핵연료시료(spiked)를 준비하여 같은 실험조건으로 glove box 내에서 수행하였다.

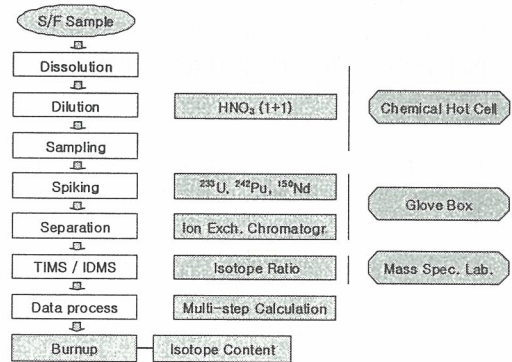


Fig. 1. Basic processes in the PIE analytical laboratory for burnup determination

2.3 질량분석 및 동위원소 정량

화학적 분리과정에 의하여 스파이크 첨가 및 미첨가시료로부터 U, Pu 및 Nd를 수집하여 화학적 농축과정을 거쳐 열이온화 질량분석기로 동위원소 조성을 측정하였다(Table 1,2), 측정결과를 바탕으로 동위원소희석 질량분석법으로 분석시료 중의 U, Pu 및 Nd 각 동위원소를 정량하였으며 시료준비 및 핵연료용해 이력을 바탕으로 핵연료 g당 원소 및 동위원소 함유량을 산출하였다.

2.4 화학적 연소도측정

Table 3에는 Nd-148 방법에 의한 총연소도를 나타내었다. 핵연료별 분석한 3개 시료 중 1개 시료는 code를 이용하여 계산한 붕평균 연소도보다

높았으며 나머지는 낮은 값을 나타내었다.

Table. 1. Isotopic compositions of uranium separated from UO_2 - Gd_2O_3 spent fuel samples

Isoto.	Atom%		
	B-1	B-2	B-3
^{234}U	0.009±0.002	0.011±0.002	0.007±0.002
^{235}U	0.430±0.012	0.473±0.004	0.528±0.006
^{236}U	0.209±0.004	0.404±0.008	0.194±0.007
^{238}U	99.373±0.042	99.113±0.032	99.275±0.026

Table. 2. Isotopic compositions of plutonium separated from UO_2 - Gd_2O_3 spent fuel samples

Isoto.	Atom%		
	B-1	B-2	B-3
^{238}Pu	2.001±0.025	3.070±0.020	1.479±0.027
^{239}Pu	56.914±0.020	48.233±0.032	59.337±0.032
^{240}Pu	24.488±0.012	25.204±0.020	23.923±0.014
^{241}Pu	11.609±0.010	14.209±0.016	11.178±0.008
^{242}Pu	4.988±0.010	9.284±0.040	4.084±0.004

Table. 3. Total burnup determined by the Nd-148 method for the UO_2 and UO_2 - Gd_2O_3 spent fuel samples

Sample	GWD/MtU	Calculated
C-1	16.7 ± 0.5	54.5
UO_2 C-2	55.9 ± 1.7	
C-3	19.0 ± 0.6	
UO_2 - Gd_2O_3 B-1	20.7 ± 0.6	40.5
B-2	43.0 ± 1.3	
B-3	18.2 ± 0.6	

2.5 동위원소 상관관계 분석

본 연구에서 분석한 결과를 토대로 연소도와 U, Pu 및 Nd 동위원소 사이의 상관관계, 동위원소들 간의 상관관계를 검토하였다. 2종의 핵연료에 대한 결과를 바탕으로 Fig. 1에는 $^{242}Pu/^{240}Pu$ 비와 총연소도와 상관관계, Fig. 2에는 $^{146}Nd/^{145}Nd$ 비와 총연소도와 상관관계를 같이 나타내었다. 같은 집합체 내에 있는 UO_2 와 UO_2 - Gd_2O_3 핵연료의 초기농축도는 각각 4.511 및 2.611 wt.%로서 차이가 크지만 비슷한 상관관계 분포를 보였다.

3. 결론

화학적 방법에 의한 UO_2 - Gd_2O_3 사용후핵연료의 연소도측정은 당 부서에서 확립한 방법으로 효과적으로 수행할 수 있었다. UO_2 - Gd_2O_3 핵연료는 UO_2 핵연료와 달리 다량의 Gd를 함유하고 있으나 화학적 전처리 및 분리과정에 큰 간섭은 주지 않았다. 현재 동위원소희석 질량분석법으로 UO_2 - Gd_2O_3 핵연료시료 중의 Gd 동위원소 정량을 검토 중에 있으며 차후에는 4중 스파이크(^{233}U , ^{242}Pu , ^{150}Nd , ^{158}Gd)를 이용한 동위원소희석 질량분석법을 응용하여 핵연료시료 중의 연소도측정과 병행하여 U, Pu, Nd 및 Gd 각각의 동위원소들을 동시에 정량할 예정이다.

4. 참고문헌

- [1] J. S. Kim et al., J. Nucl. Sci. & Technol., Vol. 44, No. 7, pp. 1015-1023, 2007.
- [2] ASTM E 321-96(Reapproved 2005), Vol. 12.01, pp. 1-10, 2005.

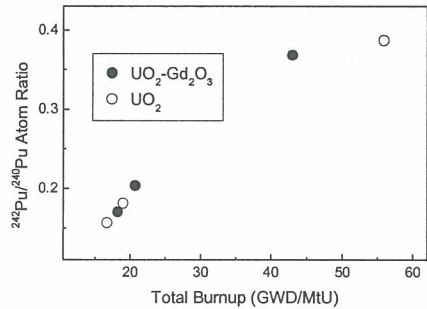


Fig. 2. Correlation between total burnup and $^{242}Pu/^{240}Pu$ atom ratio

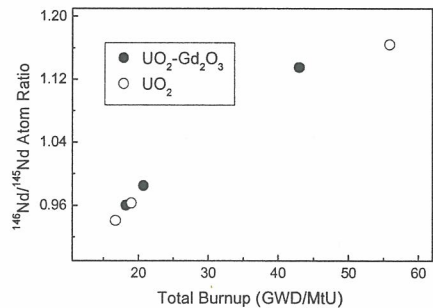


Fig. 3. Correlation between total burnup and $^{146}Nd/^{145}Nd$ atom ratio