

핵연료봉내 방출 핵분열기체의 동위원소 분포 특성

박순달, 김정석, 하영경, 한선호, 지광용

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045번지

nsdpark@kaeri.re.kr

핵연료의 중성자 조사시 발생하는 Kr, Xe 등 핵분열기체의 양은 전체 핵분열생성물 발생량의 약 30%에 달하는 주요 핵분열생성물이다. 이렇게 발생한 핵분열기체의 일부는 어떤 요인에 의해 핵연료봉내의 자유공간으로 방출된다. 핵연료봉내 자유공간으로 방출된 핵분열기체는 피복관과 핵연료 소결체 표면간의 thermal gap conductance를 떨어뜨린다. 이와 같은 gap conductance의 저하는 핵연료소결체의 온도를 증가시키고 그에 따라 핵분열기체의 방출을 더욱 가속시킨다. 이러한 현상을 thermal feedback이라 하며 He의 압력이 낮은 핵연료에서 현저하게 나타난다. 이와 같이 핵연료봉내 자유공간으로 방출된 핵분열기체는 핵연료봉의 내압을 상승시키고, thermal feed back 현상을 야기하여 핵연료봉의 안전성을 저하 시킬 수 있다.

핵연료봉내 방출 핵분열기체의 양 및 Kr, Xe의 조성비 등은 핵연료의 연소도, 농축도, 화학적형태 및 기타 원자로의 운전조건 등에 영향을 받는다. 따라서 사용후핵연료의 조사평가지 핵연료봉내 방출핵분열기체의 조성 및 방출량 측정은 중요 측정항목이다. 그러나 핵연료봉내 방출 핵분열기체의 동위원소 조성비로부터 핵연료의 건전성 및 고연소시 rim 영역에서 방출된 핵분열기체의 영향을 고찰한 연구에는 많지 않은 것 같다.

T. Jonson등¹⁾은 사용후핵연료의 핵분열기체평가에서 $(^{83}\text{Kr}+^{84}\text{Kr})/^{86}\text{Kr}$ 및 $(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})/^{134}\text{Xe}$ 와 $^{86}\text{Kr}/^{134}\text{Xe}$ 의 상관성 및 $^{86}\text{Kr}/^{134}\text{Xe}$ 와 연소도의 상관성으로부터 핵연료 조사특성을 규명하고자 하였다. 연구결과 측정된 핵분열기체의 동위원소조성비는 측정 불확도 이상의 어떤 경향성을 갖는 것으로 나타났다. J. Noirot등²⁾은 핵연료소결체 반경방향에 따른 연소도 차이 특히 핵연료의 rim에서의 높은 Pu 함량이 핵분열기체의 동위원소 조성비에 미치는 영향을 조사하였다. $(^{83}\text{Kr}+^{84}\text{Kr})/^{86}\text{Kr}$ 및 $(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})/^{134}\text{Xe}$ 의 비와 연소도와 상관성 및 모델계산에 의한 핵연료소결체의 rim에서 방출된 핵분열기체의 조성이 전체 핵분열기체 조성에 대해 미치는 영향을 검토하였다. M. Mogensen³⁾은 Xe의 이론적인 발생량 추정에 중요한 ^{135}Xe 의 ^{136}Xe 으로 전환율을 구하는데 $^{136}\text{Xe}/(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})$ 와 연소도의 상관관계를 이용하였다. ^{135}Xe 의 반감기는 9.17 시간으로 매우 짧지만 ^{135}Xe 의 중성자 포획단면적이 2.65×10^6 b으로 높기 때문에 ^{135}Xe 의 상당한 분율이 ^{136}Xe 으로 전환된다. Xe 발생량의 약 20%가 ^{135}Xe 에 기인하므로 이 현상은 Xe 발생량 계산에 중요한 의미를 갖는다.

본 연구에서는 가압경수로형 핵연료봉내 방출핵분열기체인 Kr, Xe의 동위원소 조성비와 연소도 등을 조합하여 그 상관성을 검토 하였다. 핵분열기체의 조성 및 동위원소 분포 측정에는 영국 ess사의 지름 6.3 mm, 길이 125 mm인 사중극자질량분석기를 사용하였다. 질량분석기의 표준검증에는 He 바탕기체에 Xe, Kr, N₂, O₂, Ar, CO₂를 0.05 v%-5 v% 범위로 충전한 일련의 혼합표준기체를 사용하였다. 사중극자질량분석기와 시료 주입 chamber를 충분히 배기시켜 각각의 진공도를 10^{-7} Torr, 10^{-5} Torr대로 유지시킨 상태에서 혼합표준기체를 시료 주입 chamber에 주입시켜 표준검정곡선을 작성하였다. 조사후시험시설에서 천공 포집한 핵분열기체 포집병을 사중극자질량분석기의 시료 주입부에 연결한 후 표준검증과 같은 방법으로 각 기체의 질량에 따른 피크세기를 측정하여 핵분열기체의 조성과 동위원소분포를 측정하였다.

연소도 약 30 GWd/mtU~55 GWd/mtU의 가압경수로형핵연료봉내 방출된 핵분열기체의 $(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})/^{134}\text{Xe}$ 비 및 $(^{83}\text{Kr}+^{84}\text{Kr})/^{86}\text{Kr}$ 비를 그림 1 및 그림 2에 나타내었다. 그림 1 및 그림 2에

서 보는 바와 같이 방출핵분열기체의 $(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})/^{134}\text{Xe}$ 비 및 $(^{83}\text{Kr}+^{84}\text{Kr})/^{86}\text{Kr}$ 비는 연소도가 증가함에 따라 증가함을 알 수 있다. 이와 같은 현상은 연소도가 증가함에 따라 ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu 의 열중성자 및 고속중성자 조사에 의한 ^{131}Xe , ^{132}Xe 및 ^{83}Kr , ^{84}Kr 의 생성수율이 ^{134}Xe 및 ^{86}Kr 에 비해 상대적으로 높기 때문이며 핵연료의 정상적인 연소를 나타낸다. T. Jonson등¹⁾은 $(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})/^{134}\text{Xe}$ 비 및 $(^{83}\text{Kr}+^{84}\text{Kr})/^{86}\text{Kr}$ 비를 $^{86}\text{Kr}/^{134}\text{Xe}$ 비와 상관시킨 결과 수분을 함유한 결합핵연료를 가진 핵연료봉에서 방출된 핵분열기체의 $(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})/^{134}\text{Xe}$ 비 및 $(^{83}\text{Kr}+^{84}\text{Kr})/^{86}\text{Kr}$ 비가 정상핵연료봉에 비해 매우 높음을 확인하였다. 이와 같은 동위원소비의 특성은 결합핵연료의 hyperstoichiometric fuel(UO_{2+x})에서 ^{131}Xe , ^{132}Xe 및 ^{83}Kr , ^{84}Kr 의 전구물질인 ^{131}I , ^{132}Te 및 ^{83}Se , ^{84}Se 의 빠른 확산에 기인하는 것으로 해석하였다. 향후 핵연료봉의 연소이력 등에 대한 정확한 정보와 보다 많은 핵분열기체 동위원소분포에 대한 데이터 축적으로 핵분열기체의 동위원소 조성비를 고찰함으로써 유용한 연소 정보를 얻을 수 있을 것으로 기대된다.

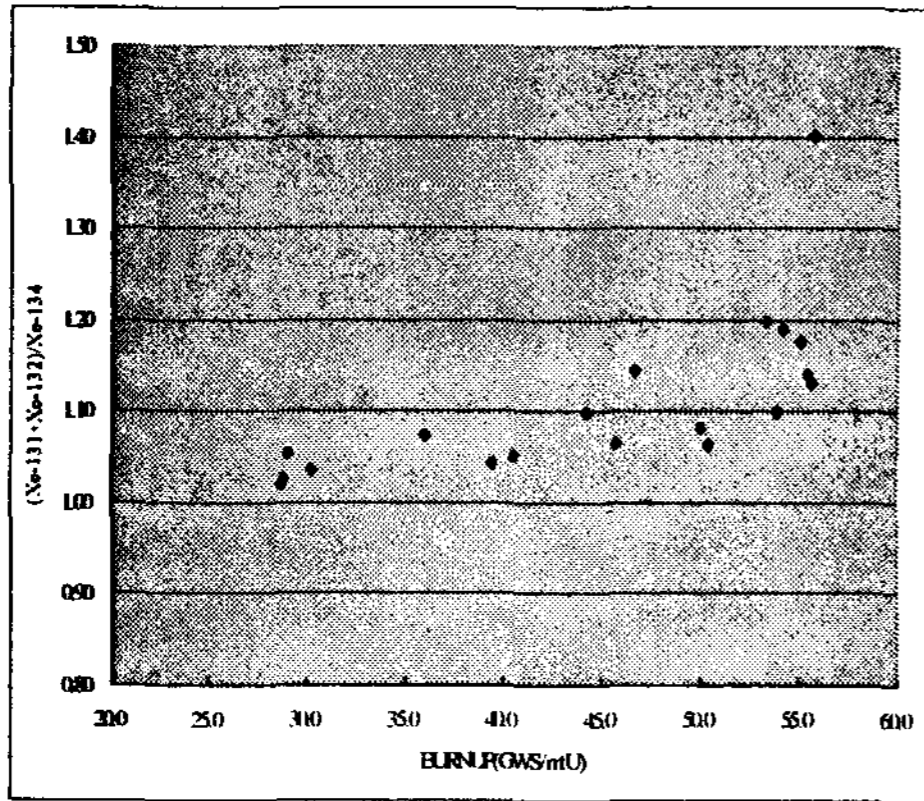


Fig. 1. The ratio of $(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})/^{134}\text{Xe}$ as a function of rod burnup.

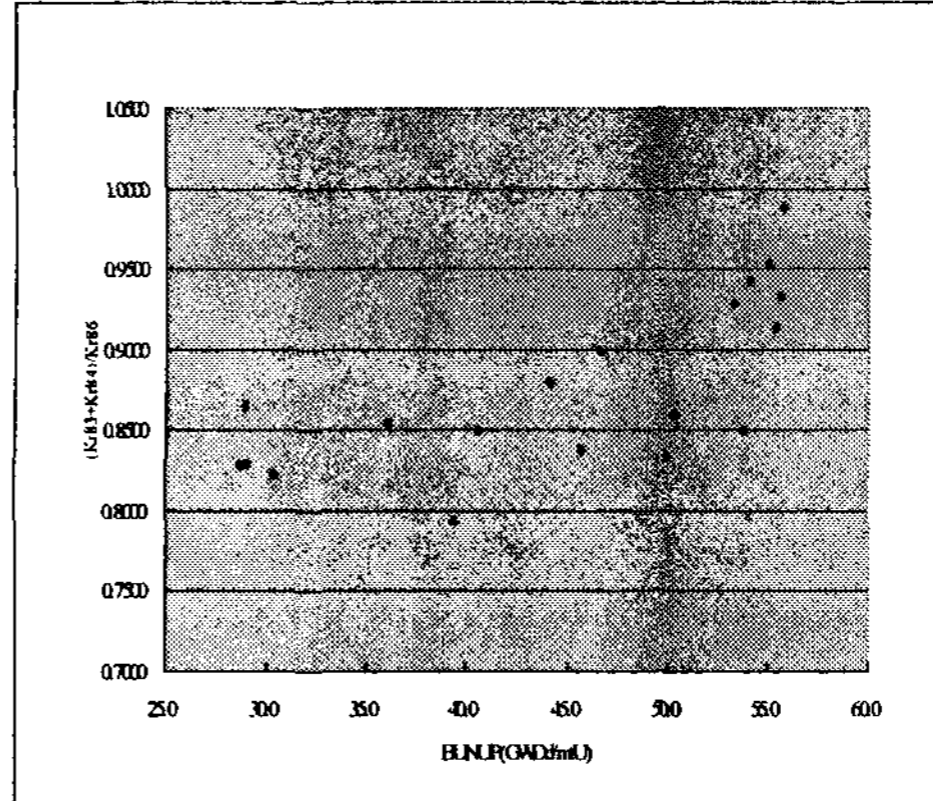


Fig. 2. The ratio of $(^{83}\text{Kr}+^{84}\text{Kr})/^{86}\text{Kr}$ as a function of rod burnup.

1. T. Jonson, "Fuel chemistry and pellet-clad interaction related to high burnup fuel," Proceedings of the technical committee IAEA(Vienna) TECDOC-1179, 11-16, October, 2000.
2. J. Noirot, L. Desgranges, P. Marimbeau, "Contribution of the rim to the overall fission gas release: What do isotopic analysis reveal, OECD/NEA International Seminar on Fission Gas Behaviour in Water Reactor Fuels," Cadarache(France) 26-29 September, 2000.
3. M. Mogensen, RISO-M-2352, Aug. 1982.