

핵연료 연소도평가에 대한 Nd-147 중성자 포획반응 효과 및 동위원소 분석

김정석, 전영신, 박순달, 한선호, 하영경
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045(덕진동 150-1)
 njskim1@kaeri.re.kr

1. 서론

핵연료 연소도는 사용후핵연료의 건전성을 평가하는데 중요한 변수이다. Nd-148 방법은 조사후 시험 핵연료시료의 연소도를 측정하는데 가장 널리 이용되고 있으며, 가장 정확한 방법으로 평가되고 있다. 반면, 이 방법으로 측정한 연소도의 정확도는 ^{147}Nd 의 중성자 포획반응에 의한 기여에 영향을 받으며, 이에 대한 보정을 하지 않을 경우 측정한 연소도 및 ^{148}Nd 동위원소 정량결과는 실제 값보다 높은 값을 나타내므로 ASTM에서도 이에 대한 보정을 수행하고 있다. 따라서 사용후핵연료에 대한 정확한 연소도를 측정하고 동위원소 상관관계를 이용한 교차분석을 수행하기 위해서는 사용후핵연료 중의 Nd를 화학적 전처리방법으로 순수하게 분리하고 질량분석으로 동위원소비를 측정한 다음 이들 결과에 대해 ^{147}Nd 중성자 포획반응에 의한 기여 등을 포함한 보정을 수행하여 정확한 동위원소조성을 산출해야 한다.

2. 실험 및 결과

조사후시험을 위하여 국내 원전으로부터의 반입된 고연소 PWR 핵연료시료에 대해 화학적 방법(Nd 지표원소 방법)에 의한 연소도를 측정하였다. 이 과정에서 시료로부터 분리한 Nd를 질량분석하고 측정 동위원소비에 대하여 ASTM 방법을 바탕으로 질량편차 바이아스, 천연으로부터의 오염, 스파이크 불순물 및 ^{147}Nd 중성자 포획에 의한 기여를 보정한 동위원소조성을 산출하였다. Table 1에는 2 종의 고연소핵연료시료의 스파이크(Nd-150) 첨가 및 미첨가 시료에 대하여 상기의 항목들에 대하여 보정하고 산출한 Nd 동위원소조성(atom%)을 나타내었다. 스파이크첨가시료의 경우, 교정전의 동위원소조성과 비교하였을 때, ^{150}Nd 의 조성변화가 가장 컸으며 약 2.5% 낮게 산출되었다(교정전 S-1 : 17.4631%, S-2 : 17.4566%). Table 2에는 보정 Nd 동위원소조성 및 U과 Pu 동위원소 측정결과를 이용하여 ASTM 방법에 준하여 Nd 동위원소 지표원소(Nd-148, Nd-145+145, Nd-total) 법으로 산출한 연소도결과를 나타내었다. 세 방법에 의한 측정결과는 1% 이하의 상대오차 범위에서 상호일치하였으며, 산출된 Nd 동위원소의 신뢰도를 확인하였다. 연소도 측정결과에 대한 교차분석을 위하여 보정 동위원소조성을 이용 몇가지 동위원소비[$^{144}\text{Nd}/^{143}\text{Nd}$, $^{146}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$, $^{148}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$, $^{146}\text{Nd}/^{148}\text{Nd}$, $^{150}\text{Nd}/^{148}\text{Nd}$, $^{143}\text{Nd}/(^{145}\text{Nd}+^{146}\text{Nd})$ 및 $^{148}\text{Nd}/(^{145}\text{Nd}+^{146}\text{Nd})$]를 산출하고 총연소도와 상관관계를 나타내 보았다. 측정시료를 조사된 국내의 원전별(A 및 B)로 분류하여 상관관계를 나타내 보았을 때, Fig. 1 및 2와 같이 나타났으며 두 경우 비슷한 분포를 보

Table 1. Neodymium Isotope compositions of the high burnup PWR fuel samples corrected for mass discrimination bias, natural contamination, spike impurity and neutron capture effect

Sample	Atom %						
	Nd-143	Nd-144	Nd-145	Nd-146	Nd-148	Nd-150	
S-1	Non-spiked	16.8342	35.2633	15.8020	18.3760	9.2716	4.4528
	Spiked	14.9576	31.7415	14.0726	16.4143	7.8456	14.9684
S-2	Non-spiked	17.3264	34.8090	15.9324	18.3190	9.2389	4.3743
	Spiked	15.3940	31.3415	14.1352	16.3349	7.8839	14.9105

였다. 보정 Nd 동위원소 및 U 동위원소 조성을 이용하여 동위원소희석 질량분석법으로 각각의 원소 및 성분 동위원소들을 정량하고, 상대비(Nd/U 및 $^{148}\text{Nd}/\text{U}$)를 구한 다음 측정된 연소도와의 상관관계를 나타내 보았다. 이 결과를 ORIGEN-S 핵종계산치를 이용하여 나타낸 상관관계와 비교해 보았을 때, 비슷한 직선성을 보이고 상호 잘 일치하였다(Fig. 3 및 4).

Table 2. Total burnup determined by the Nd isotope monitor methods for the high burnup PWR fuel samples

Sample	GWD/MTU		
	Nd-148	Nd-(145+146)	Nd-Total*
S-1	52.78±1.65 (1.000)	53.22±1.66 (1.008)	52.86±1.65 (1.002)
S-2	51.40±1.61 (1.000)	51.37±1.61 (0.999)	52.86±1.65 (1.002)

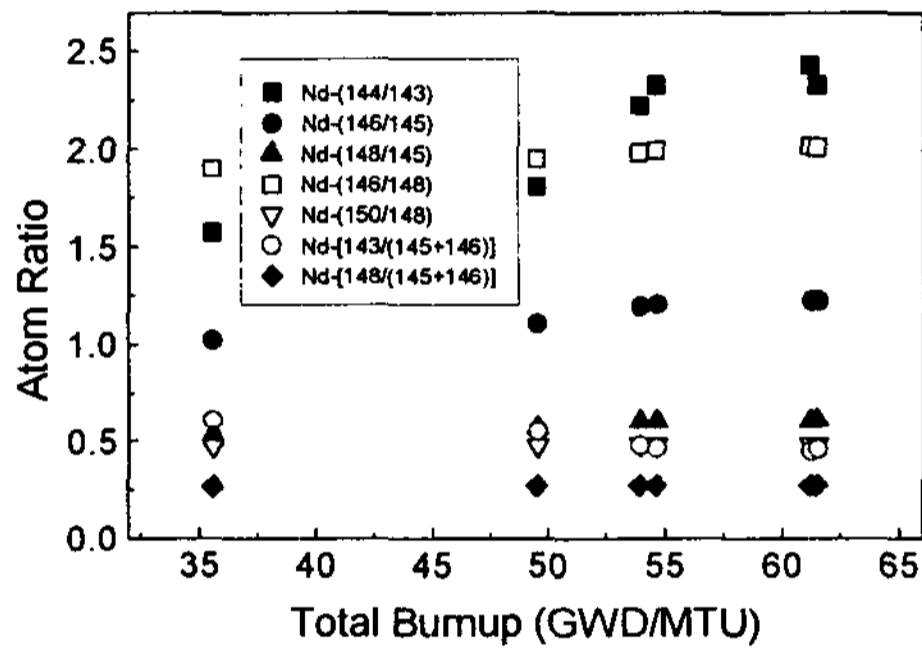


Fig. 1. Dependency of the Nd isotopes on the total burnup for the high burnup PWR fuel samples from NPP-A

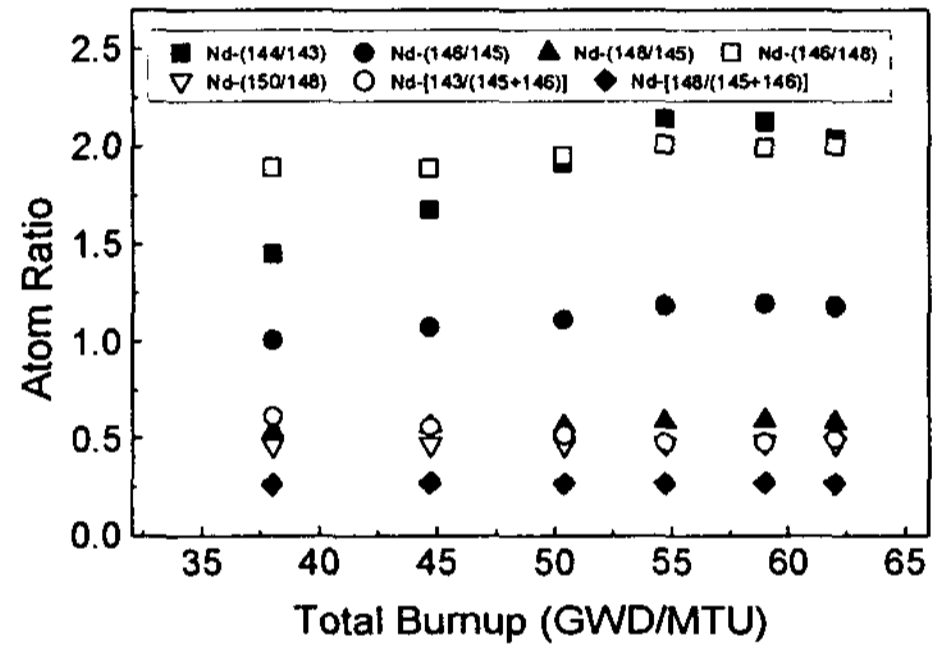


Fig. 2. Dependency of the Nd isotopes on the total burnup for the high burnup PWR fuel samples from NPP-B

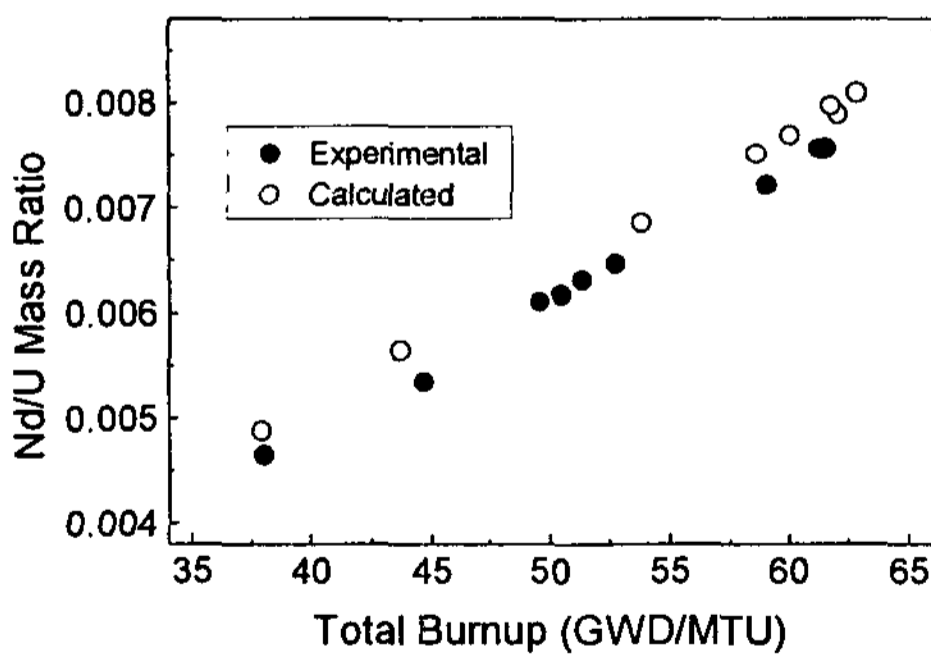


Fig. 3. Correlation of the Nd/U mass ratio on the total burnup for the high burnup PWR fuel

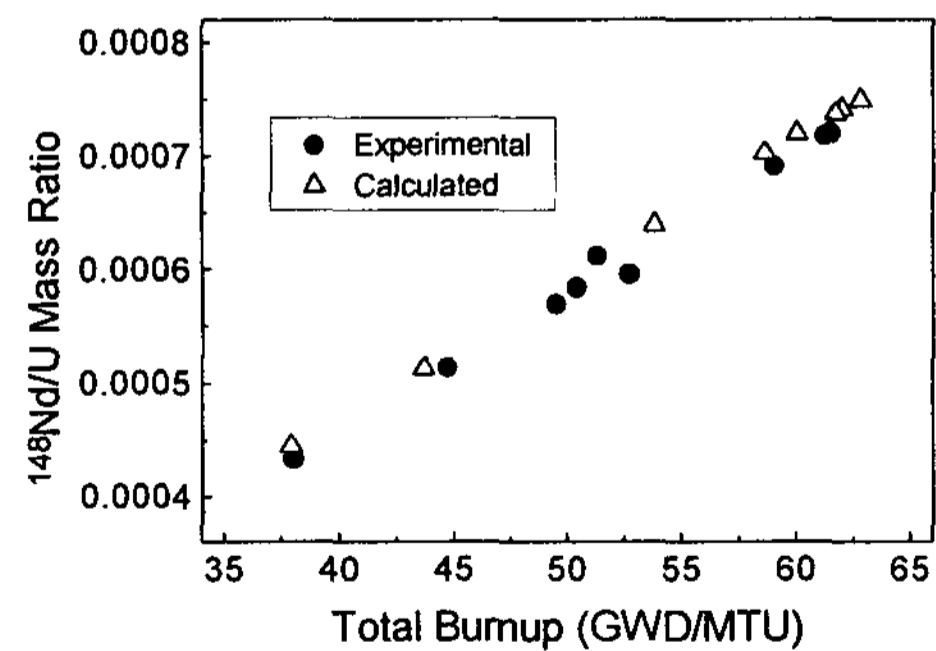


Fig. 4. Correlation of the $^{148}\text{Nd}/\text{U}$ mass ratio on the total burnup for the high burnup PWR fuel

3. 결론

Nd 지표원소방법에 의한 핵연료 연소도의 정확한 측정 및 Nd 동위원소를 정량하기 위해서는 핵연료 중의 Nd에 대한 정확한 동위원소조성 산출이 필요하다. 따라서 핵연료시료로부터 Nd를 동중원소(Ce, Sm) 간섭없이 순수하게 분리해야 하며, 질량분석결과에 대한 ^{147}Nd 중성자포획에 의한 기여 등 제반 보정이 반드시 이루어져야 한다.