

동위원소희석 질량분석법을 이용한 $UO_2-Gd_2O_3$ 사용후핵연료 중 Gd 동위원소 정량

김정석, 전영신, 김현정, 최광순, 한선호
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 niskim1@kaeri.re.kr

1. 서론

PWR 핵연료집합체에는 일정량의 Gd를 함유한 핵연료, 즉, $UO_2-Gd_2O_3$ 핵연료를 포함하고 있다. 원자로내에서 조사된 $UO_2-Gd_2O_3$ 핵연료 중의 중성자흡수단면적이 큰 Gd 동위원소(^{155}Gd : 61000 barn, ^{157}Gd : 254000 barn)들의 분포와 감손 특성은 핵연료설계를 위한 기초자료로 활용되고 있다. Gd 동위원소 정량결과는 원자로냉각수에 첨가하는 boron의 농도를 낮출 수 있고 핵반응에 의한 tritium 생성에 대한 정보를 얻을 수 있다. $UO_2-Gd_2O_3$ 핵연료봉 중의 Gd 동위원소 분포 및 평가는 축 및 반경방향 모두에 대해 이루어 지고 있다. 반경방향의 Gd 동위원소 분포연구는 micro-drilling 시료채취 후 용해, 핵중분리 후 열이온화 질량분석기(TIMS)를 이용하여 동위원소를 측정하거나, 시료채취 후 이차이온 질량분석기(SIMS) 등으로 동위원소를 측정하고 있다[1]. 화학적 방법에 의한 $UO_2-Gd_2O_3$ 핵연료시료 중의 Gd 동위원소 정량은 주로 연소도측정과 병행하여 이루어지고 있으며 이를 위하여 4중 스파이크를 이용한 동위원소희석 질량분석법 등이 응용되고 있다. 따라서 핵연료시료 중의 U, Pu, Nd 및 Gd를 순수하게 분리하고 동시정량하기 위하여 음이온-양이온 교환 분리 혹은 음이온-음이온 교환분리 등이 연구되고 있다.

본 연구에서는 $UO_2-Gd_2O_3$ 사용후핵연료의 연소도측정과 병행하여 핵연료시료 중의 Gd 동위원소를 동시 정량하는 방법을 연구하였다. 동중원소를 포함하는 모의핵분열생성물로부터 Gd를 순수하게 분리하는 화학적 분리방법을 연구하였다. 이 결과를 바탕으로 실제 $UO_2-Gd_2O_3$ 사용후핵연료로부터 Gd를 분리하고 동위원소 조성을 측정하였으며 ^{158}Gd 를 스파이크로 이용하는 동위원소희석 질량분석법으로 핵연료시료 중의 Gd 동위원소들을 정량해 보았다.

2. 실험 및 결과

2.1 시료 및 표준용액 준비

핵분열생성물로부터 순수한 Gd 분리에 따른 동중원소(Dy, Eu, Sm, BaO)들의 분리 및 간섭효과를 조사하기 위하여 개별 및 혼합 표준용액(각각 100 μg)을 준비하였다. 동위원소희석 질량분석법으로 모의 핵분열생성물 및 실제 사용후핵연료 중의 Gd를 정량하기 위하여 ^{158}Gd 스파이크(Table 1) 용액을 제조하여 이용하였다(Table 1). 제조한 스파이크용액의 정확한 농도를 산출하기 위하여 천연 Gd 표준용액을 이용하여 동위원소희석 질량분석법으로 표정하였다. 사용후핵연료시료는 고리 3호기에서 조사된 $UO_2-Gd_2O_3$ 핵연료(2.611 w/o)를 화학실험셀로 이송하여 질산 용해 및 희석 후 일정량을 취하여 사용하였다.

Table 1. Isotopic composition of certified spike from ORNL

Spike	Isotope	Atom%	Precision(+/-)
^{158}Gd	Gd-152	<0.02	0.00000
	Gd-154	0.05	0.02000
	Gd-155	0.25	0.02000
	Gd-156	0.46	0.05000
	Gd-157	0.88	0.05000
	Gd-158	97.53	0.10000
	Gd-160	1.83	0.10000

2.2 모의 핵분열생성물 중 성분원소 분리

연소도측정과 병행하여 사용후핵연료 중의 Gd 동위원소를 동위원소희석 질량분석법으로 정량하기 위해서는 핵연료 중의 핵분열생성물 동중원소(Table 2)들로부터 Gd를 순수하게 분리해야 한다. 핵분열생성물 동중원소 중 La, Ce, Pr는 연소도측정을 위한 Nd의 순수분리 과정에서 제거된다[2]. 따라서 Nd 분리에 이어 Gd를 순수하게 분리하기 위해서는 Gd를 함유한 용액으로부터 동중원소를 포함하는 Sm, Eu, Dy 및 BaO의 간섭이 없이 분리되어야 한다. 따라서 본 연구에서는 순수분리를 위하여 HNO_3 -MeOH 계의 여러 용리조건을 검토

하였으며, 그 결과 음이온교환(AG 1X4) 분리관에 14.4 M HNO₃-99.8% MeOH(1:19) 용액으로 모의핵분열생성물을 흡착시키고 14.4 M HNO₃-99.8% MeOH(2:8) 용액으로 Gd를 용리하는 방법이 효과적이었다. 이 용리액과 혼합 표준용액을 이용하여 분배계수를 측정하고 용리분포 및 분리인자를 검토하였다(Fig. 1). 본 실험결과, Gd은 다른 희토류원소인 Sm, Eu, Dy들로부터 간섭없이 순수한 분리가 가능하였으나 비희토류원소인 Ba 으로부터의 간섭이 존재하였다. 따라서 Ba 제거를 위한 양이온교환(AG 50WX8) 정제과정을 추가하였다.

Table 2. Contribution of other fission product isobars for gadolinium isotopes

Isotope	Natural	F. P	Other F. P isobars
Gd-152	O	O	¹⁵² Sm, ¹⁵² Eu, ¹³⁶ Ba ¹⁶ O
Gd-154	O	O	¹⁵⁴ Sm, ¹⁵⁴ Eu, ¹³⁸ Ba ¹⁶ O
Gd-155	O	O	¹⁵⁵ Eu, ¹³⁹ La ¹⁶ O
Gd-156	O	O	¹⁴⁰ Ce ¹⁶ O
Gd-157	O	O	¹⁴¹ Pr ¹⁶ O
Gd-158	O	O	¹⁴² Ce ¹⁶ O, ¹⁴² Nd ¹⁶ O
Gd-160	O	O	¹⁶⁰ Dy, ¹⁴⁴ Ce ¹⁶ O, ¹⁴⁴ Nd ¹⁶ O

- F. P : fission product
 - Ignored for the contributions of the compounds with ¹⁷O and ¹⁸O

2.3 사용후핵연료시료 중의 Gd 분리

사용후핵연료시료 중의 Gd 정량을 위한 화학적 분리과정은 모의핵분열생성물을 이용한 예비실험으로 확립한 조건을 그대로 적용하였다. 핵연료시료 중의 Gd 동위원소들을 동위원소희석 질량분석법으로 정량하기 위하여 일정량의 ¹⁵⁸Gd 스파이크를 사용후핵연료시료에 첨가하였다. 스파이크를 첨가한 시료와 첨가하지 않은 시료를 동일하게 전처리하고 연속적 음이온교환과 양이온교환 분리를 하였다.

2.4 동위원소희석 질량분석법에 의한 Gd 정량

제조한 ¹⁵⁸Gd 스파이크용액의 표정, 모의 사용후핵연료시료 중의 Gd 정량, 실제 사용후핵연료시료 중의 Gd 정량 모두 동위원소희석 질량분석기술을 적용하였다. 제조한 스파이크용액 및 천연 Gd 표준용액 일정량을 첨가한 스파이크용액, 모의 사용후핵연료시료로부터 분리한 Gd 용액 및

스파이크 일정량을 첨가한 모의 사용후핵연료시료로부터 분리한 Gd 용액, 실제 사용후핵연료시료로부터 분리한 Gd 용액 및 스파이크 일정량을 첨가한 실제 사용후핵연료시료로부터 분리한 Gd 용액 각각을 증발건조시킨 후 최종 1 M HNO₃ 용액 4-5 방울로 농축하였다. Rhenium 이중필라멘트에 점적하고 열이온화 질량분석기로 동위원소 조성(질량 152, 154, 155, 156, 157, 158, 169)을 측정하였다. 각 시료 중의 Gd 농도는 다동위원소희석 질량분석법(polyisotopic IDMS)으로 정량하였다[3].

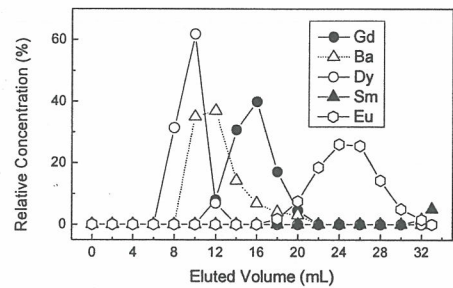


Fig. 1. Elution of Gd from simulated fission products

3. 결론

본 연구에서 확립한 분리도해를 이용하여 사용후핵연료 중의 Gd을 동위원소의 간섭없이 순수하게 분리할 수 있었다. 본 분리도해를 이용할 경우 사용후핵연료 중의 Eu 또한 순수하게 분리 및 정량이 가능하였다. 본 연구의 Gd 분리 및 정제기술과 Gd 스파이크(¹⁵⁸Gd)를 이용한 Gd 동위원소 정량기술을 현재의 연소도측정기술에 응용하면 향상된 방법인 4중 스파이크(²³³U, ²⁴²Pu, ¹⁵⁰Nd, ¹⁵⁸Gd)를 이용하는 동위원소희석 질량분석기술로 연소도를 측정할 수 있으며 병행하여 핵연료시료 중의 U, Pu, Nd, 및 Gd 각각의 동위원소들을 동시에 정량할 수 있음을 확인하였다.

4. 참고문헌

[1] IWGFPT/31, pp.23-36, IAEA, 1989.
 [2] J. S. Kim et al., J. Nucl. Sci. & Technol., Vol. 44, No. 7, pp. 1015-1023, 2007.
 [3] J. S. Kim et al., Anal. Sci. & Technol., Vol. 14, No. 4, pp. 291-299, 2001.