

# 연소도와 U, Pu, Nd 및 Cs 동위원소 상관관계를 이용한 조사 U-Mo 분산핵연료 분석

김정석\*, 강병만, 박양순, 김영복, 박재일, 하영경  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111  
 \*njskim1@kaeri.re.kr

## 1. 서론

높은 중성자속을 유지할 수 있고 사용한 핵연료의 처분이 용이한 차세대 연구로용 핵연료로서 고밀도 우라늄의 U-Mo 분산핵연료 개발이 전세계적으로 진행 중에 있다. U-Mo 고밀도핵연료의 개발 및 성능검증이 완료되면 현재 연구용원자로에서 사용되고 있는 uranium silicide 핵연료는 U-Mo 분산핵연료로 전환될 것으로 기대되며, 현재 건설이 진행 중인 기장 수출용 신형 연구용원자로 (KJRR) 에도 플레이트 타입의 U-Mo 분산핵연료가 사용될 예정이다. 개발된 U-Mo 분산핵연료의 건전성을 확인하기 위해서는 조사핵연료에 대한 파괴 및 비파괴 조사후시험이 이루어져야 한다. 조사핵연료의 분석결과에 대한 일관성을 확인하기 위하여 측정된 무거운원소 및 핵분열생성물 농도, 동위원소조성 및 상대비 등의 핵연료변수와 연소도 사이의 상관관계 연구가 이루어지고 있다. 또한 이러한 상관관계 연구는 연소도 및 Pu 생성량 예측, safeguards 등의 목적에도 이용되고 있다. 동위원소 상관관계는 3 가지 부류, 즉, 무거운 원소의 동위원소에 기초한 상관관계, 안정한 핵분열생성물에 기초한 상관관계 및 방사성 핵분열생성물에 기초한 상관관계로 나누어 연구되고 있다[1].

본 연구에서는 하나로에서 조사시킨 8 종의 U-Mo 분산핵연료에 대하여 화학적 방법으로 연소도 측정 및 방사성핵종 분석을 수행하고 분석결과에 대한 일관성을 확인하기 위하여 동위원소 상관관계를 연구하였다. 핵연료 중의 U, Pu, Nd 및 성분 동위원소들을 U-233, Pu-242 및 Nd-150을 스파이크로 이용하는 동위원소희석 질량분석기술로 동시정량하고 Nd 동위원소를 지표원소로 이용하여 핵연료 연소도를 측정하였다. 방사성핵종들을 정량하기 위하여 핵연료 용해용액 일정량을 취하여 희석후 화학적 분리없이 감마선분광분석을 수행하여 방사성핵종들을 정량하였다. 이들 분석결과로부터 무거운 원소 (U, Pu), 안정한 핵분열생성물 (Nd) 및 방사성 핵분열생성물 (Cs)의 동위원소를 선정하여 연소도 및 핵연료변수와의 상관관계를 연구하였다.

## 2. 실험 및 결과

### 2.1 조사 U-Mo 분산핵연료 연소도 화학분석

본 연구에 사용한 조사 U-Mo 분산핵연료는 U-7wt% Mo (19.75wt% U-235 enrichment)과 Al- 5wt%Si 분말 혼합체의 핵연료심재 및 Al 6061 plate 피복재로 구성되었다. 분산핵연료 중의 U, Pu, Nd 및 성분 동위원소와 방사성핵종 정량, 화학적 방법에 의한 연소도 측정 및 동위원소 상관관계 연구를 위한 전반적인 과정은 Fig. 1과 같다. 핵연료

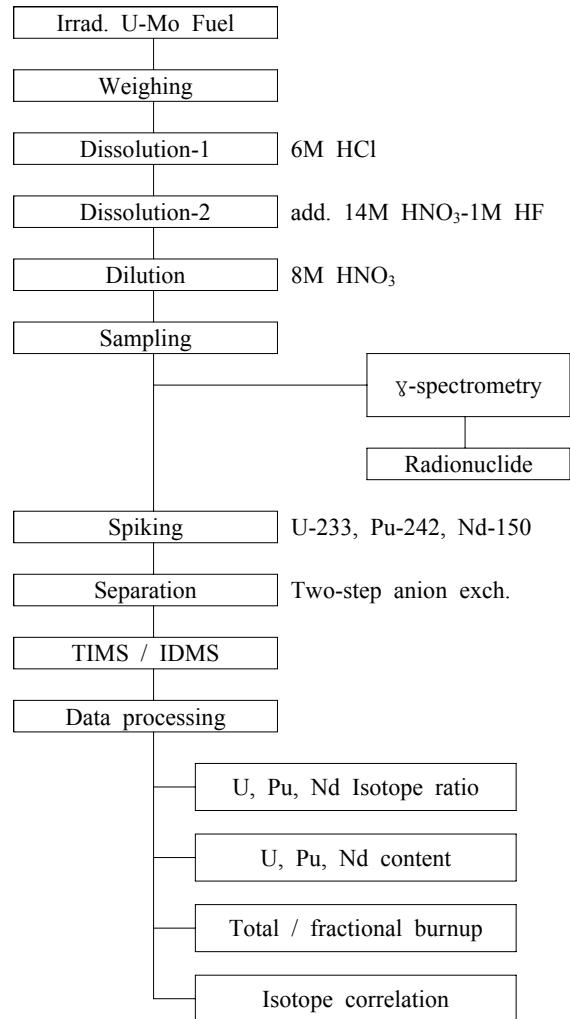


Fig. 1. Analytical processes for the determination of burnup and radionuclides, and the isotope correlation studies for the irradiated U-Mo dispersion fuel.

용해는 피복재를 용해하는 1 단계와 심재핵연료를 용해하는 2 단계 과정을 연속적으로 수행하고 각 시료의 용해용액을 일정량씩 취하고 희석하여 감마선분광분석, 연소도측정 및 동위원소분석을 위한 시료를 준비하였다.

## 2.2 방사성 핵분열생성물을 이용한 상관관계

감마선분광분석에 의하여 측정된 조사 분산핵연료 시료의 방사성핵종 중  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  및  $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ 에 대한 activity ratio 혹은 atom ratio를 구하고 붕괴 보정을 하여 상관관계 연구에 이용하였다 (Table 1).

Table 1. The  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  and  $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$  activity ratios determined in the U-Mo fuel samples

Sample	Activity ratio (non-corrected)	
	$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$	$^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$
6-C-1	0.326	0.0215
8-C-1	0.323	0.0192
8-C-2	0.314	0.0188

## 2.3 안정한 핵분열생성물을 이용한 상관관계

열이온화 질량분석 (TIMS)에 의하여 측정된 조사 분산핵연료시료 중의  $^{146}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$ ,  $^{146}\text{Nd}/^{148}\text{Nd}$  및  $^{148}\text{Nd}/^{145}\text{Nd}$  등에 대한 atom ratio를 구하고 천연으로부터의 오염을 보정하여 상관관계 연구에 이용하였다.

## 2.4 무거운 원소 동위원소를 이용한 상관관계

열이온화 질량분석에 의하여 측정된 조사 분산핵연료시료 중의 U과 Pu 동위원소 중  $^{235}\text{U}/^{236}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ ,  $^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  및  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  등에 대한 atom ratio를 구하여 상관관계 연구에 이용하였다.

## 2.5 상관관계연구를 위한 총연소도

상관관계연구에 필요한 총연소도는 공인된 Nd-148 지표원소법 (ASTM 321-96)에 의하여 산출한 결과를 이용하였다. 연소도 측정결과에 대한 신뢰도확인을 위하여 다른 Nd 지표원소 (Nd-145+146 등)를 이용하여 측정된 결과와 상호 비교하였다.

## 3. 결론

조사 U-Mo 분산핵연료의 연소도측정 및 화학분석 결과에 대한 동위원소 상관관계연구를 수행한

결과, 대부분 좋은 직선성을 보이는 양호한 결과를 얻었으며 화학적 분석결과에 대한 신뢰도를 확인할 수 있었다. 화학적 조사핵연료분석에 질량분석 및 방사능측정 기술을 병행하여 이용할 경우 핵연료 성능검증에 매우 효과적인 것으로 생각된다.

Table 2. The  $^{235}\text{U}/^{236}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  and  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  atom ratios determined in the U-Mo fuel samples

Sample	Atom ratio		
	$^{235}\text{U}/^{236}\text{U}$	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$
6-C-1	3.851	0.0945	0.0245
6-C-2	3.338	0.0925	0.0277
6-C-3	3.090	0.0879	0.0284
8-C-1	3.951	0.0963	0.0244
8-C-2	4.093	0.0975	0.0238
8-C-3	2.784	0.0821	0.0295

Table 3. The  $^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  and  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios determined in the U-Mo fuel samples

Sample	Atom ratio		
	$^{242}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$
6-C-1	0.0460	0.0116	0.251
6-C-2	0.0466	0.0118	0.254
6-C-3	0.0470	0.0123	0.262
8-C-1	0.0454	0.0113	0.249
8-C-2	0.0436	0.0107	0.245
8-C-3	0.0539	0.0149	0.277

## 4. 참고문헌

- [1] C. Foggi, F. Frenquellucci and G. perdisa, "Isotope Correlations Based on Fission-product Nuclides in LWR Irradiated Fuels. A Theoretical Evaluation," IAEA-SM-201/44, Safeguarding Nuclear Materials, vol. II, 425-438, IAEA, Vienna (1976).
- [2] J.S. Kim, Y.S. Jeon, S.D. Park, Y-K Ha and K. Song, "Analysis of High Burnup Pressurized Water Reactor Fuel Using Uranium, Plutonium, Neodymium, and Cesium Isotope Correlations with Burnup", Nucl. Eng. Technol., 47(7), 924-933 (2015).