

DUPIC 소결체 펠릿에 함유되어 있는 핵분열생성물 분석

이창현*, 서무열, 최광순, 김정석, 최계천, 김원호

한국원자력연구소

대전시 유성구 덕진동 150. 사서함 105. nchlee1@kaeri.re.kr

Determination of Fission Products in DUPIC Sintered Pellets

Chang Heon LEE*, Moo Yul SUH, Kwang Soon Jung Suk Kim, CHOI, Ke Chon CHOI and Won Ho KIM

Korea Atomic Energy Research Institute

Yusong, Taejon, P.O. Box 105, 305-600, Korea

Phone; +82-042-868-8149, Fax; +82-42-868-8148, E-mail; nchlee1@kaeri.re.kr

요 약

경수로 사용후핵연료 및 경·중수로 연계핵연료 (DUPIC Fuel)에 미량 함유되어 있는 핵분열생성물 분석기술을 확립하였다. 음이온교환수지법과 tri n-butylphosphate (TBP) 및 di(2-ethylhexyl) phosphoric acid (HDEHP) 추출 크로마토그래피로 핵분열생성물을 선택적으로 분리, 회수한 후 유도 결합 플라즈마 원자방출분광기/차폐 시스템으로 상대표준편차(n=3) 5% 이하의 분석결과를 얻을 수 있었다. 15,000~35,000 MWd/MtU 연소도 범위의 경수로 사용후핵연료를 대상으로 핵분열생성물을 정량하고 연소도와의 관계를 비교하였으며, 35,139±1098 MWd/MtU 연소도의 경수로 사용후핵연료와 DUPIC 소결체 펠릿(35,502 MWd/MtU)을 분석하고 표준물첨가법으로 분석결과에 대한 신뢰도를 평가하였다.

Abstract

An analytical technique for trace amounts of fission products in spent PWR (Pressurized Water Reactor) fuels and DUPIC (Direct Use of Spent PWR Fuel in CANDU reactor) fuels has been established. Fission products(Sr, Ba, Cd, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd and Y) were quantitatively recovered by anion exchange, tri n-butylphosphate (TBP) and di(2-ethylhexyl)phosphoric acid (HDEHP) extraction chromatography. In practice, spent PWR fuels whose burnup were between 15,000~35,000 MWd/MtU were analyzed with the relative standard deviation of less than 5% using ICP-AES/shielding system. In addition, spent PWR fuel with burnup of 35,139±1098 MWd/MtU and DUPIC sintered pellet(35,502 MWd/MtU) were analyzed and then the determination reliability of the established analytical technique was evaluated by standard addition method.

1. 서론

사용후핵연료 관리·이용기술 개발과 관련하여 수행되고 있는 경수로 사용후핵연료 고온 건식 처리공정과 경·중수로 연계핵연료주기 공정기술 개발을 위하여 경수로 사용후핵연료와 공정 중간물질 및 최종 생산물질(금속전환체 및 DUPIC 핵연료)에 미량 함유되어 있는 핵분열생성물을 정량하여 전 공정간의 물질수지를 평가하고 공정물질의 화학특성 규명에 필요한 기초자료를 제공해야 한다. 그러나 시료가 납 차폐시설에서만 다룰 수 있는 방사성 물질이고 연구과정에서 발생하는 시료의 매질이 매우 다양하기 때문에 감도가 크고 분석과정이 단순하여 적은 양의 시료로부터 신속한 연구결과를 얻을 수 있는 분석기술이 요구된다.

국내·외적으로 uranium 정련, 변환 및 이산화 우라늄 핵연료 가공에 관련된 선행핵연료주기 연구과정에서 우라늄 화합물과 zircaloy 등과 같은 핵금 재료물질 분석에 폭 넓게 적용되고 있는 유도 결합 플라즈마 원자방출분광법(ICP-AES)은 감도가 커서 미량 농도의 금속원소 분석이 가능하고, 여러 성분을 동시에 분석할 수 있으며, 측정 가능 농도범위가 넓고 그리고 시료의 매질 간섭효과가 작은 장점이 있어서[1] 현재 원자력 산업분야에서 우라늄 화합물 분석을 위한 표준방법으로 선택되고 있다[2].

이와 같은 장점은 특히 분석과정에서 발생하는 방사성 폐기물의 양을 줄일 수 있고 분석자의 방사성 피폭시간을 감소시킬 수 있어서 방사성 물질 분석에 가장 적합한 것으로 평가되어 왔다[3,4]. 그러나 사용후핵연료의 매질인 uranium과 비교적 과량 생성되는 plutonium(≒ 3%)은 방출 스펙트럼이 매우 복잡하여 미량의 핵분열생성물 정량에 분광학적 간섭을 하는 것으로 알려져 있어서[5~7] 핵분열생성물을 미리 분리, 회수할 필요가 있다. 또한 americium 및 curium과 같은 고 방사성 알파 핵종들도 분석자의 안전과 방사성 폐기물의 효율적인 처리의 관점에서 미리 분리시킬 필요가 있다[8].

본 연구에서는 35,000 MWd/MtU 연소도의 경수로 사용후핵연료를 기준 시료로 정하고 이와 화학조성이 유사하도록 제조한 모의 경수로 사용후핵연료 용해용액을 사용하여 핵분열생성물 정량에 필요한 핵분열생성물의 선택적 분리 및 회수 등 제반 실험조건을 최적화하여 핵분열생성물 분석기술을 확립하였다. 그리고 실제 15,000~35,000 MWd/MtU 연소도 범위의 경수로 사용후핵연료와 $35,139 \pm 1098$ MWd/MtU 연소도의 경수로 사용후핵연료 그리고 평균 35,502 MWd/MtU 연소도의 경수로 사용후핵연료를 원료로 사용하여 제조한 DUPIC 소결체 펠렛을 분석하고 표준물질가법으로 분석결과에 대한 신뢰도를 평가하였다.

2. 실험

2.1. 측정기기 및 장치

방사성 시료 분석이 가능하도록 Thermo Jarrell Ash사의 ICP-AES(IRIS-HR)와 스테인리스 스틸 재질의 글로브 박스(두께; 4 mm, 내부용적; 1.6 m³)를 결합시킨 ICP-AES/차폐 시스템을 구성하였다[9]. Echelle 분산형 광학 시스템과 CID(charge Injection device) 검출기로 구성된 분광기의 특성과

분석조건은 Table 1과 같다.

2.2. 시약 및 분리관

Spex사의 ICP-AES 검정용 표준용액($1,000 \text{ ml}^{-1}$)을 적절한 농도로 희석하여, 10 년 냉각시킨 35,000 MWD/MTU 연소도의 경수로 사용후핵연료 용해용액과 화학조성이 유사한 비방사성 모의용액을 제조하였다. U(U_3O_8 , NBL Certified Reference Material 129)과 $^{239}\text{Pu}[(\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$, North American Scientific, INC, 40.94 kBq] 그리고 $^{241}\text{Am}(\text{AmCl}_3$, North American Scientific, INC, 37.22kBq)은 사용하기 전에 첨가하였다. 실험에 사용된 모든 시약은 분석시약급으로서 정제하지 않고 사용하였으며, 이차 증류수는 탈염수를 Milli-Q plus Ultra Pure Water System (Millipore)에 통과시켜 제조하였다.

Pu, U 및 Am을 분리하기 위하여 Bio-Rad사의 AG MP-1(200~400 mesh) 음이온 교환수지와 Merck사의 tri n-butylphosphate(TBP) 및 di(2-ethylhexyl)phosphoric acid(HDEHP)를 Aldrich사의 Amberlite XAD-16 다공성 수지에 침윤시켜 제조한 수지(100~200 mesh)를 사용하였다[10]. 침윤된 TBP와 HDEHP의 양은 분리관의 효율을 고려하여 각각 2 및 $2.47 \text{ mmole g}^{-1}$ 로 조절하였다. 분리과정에서 발생할 방사성 폐기물 처리를 고려하여 폴리에틸렌 재질의 일회용 피펫을 분리관으로 사용하였으며, 음이온교환수지 분리관은 안지름이 7 mm 그리고 추출 크로마토그래피 분리관은 4 mm의 것을 사용하였다.

2.3. 핵분열생성물 분리 및 정량

15,000~35,000 MWD/MTU 연소도 범위의 경수로 사용후핵연료 시편 3 개와 35,165 MWD/MtU 평균 연소도의 경수로 사용후핵연료를 원료로 사용하여 제조한 DUPIC 소결체 펠렛 시편을 일정량(약 500 mg) 취하여 납차폐 핫셀 안에 설치되어 있는 용해장치에 넣고 7.5~8 M 질산으로 약 5 일간 용해시켰다. 냉각 후 용해용액의 무게를 측정된 다음 Millipore사의 막거름종이 (membrane filter)를 사용하여 불용성 잔류물을 거르고 폴리에틸렌 용기에 보관하였다. 용해용액의 산도를 측정하고 용해용액의 우라늄 함량을 전위차적정법(또는 전기량적정법)으로 결정한 다음 약 30 mg의 우라늄이 함유되어 있는 용해용액을 무게로 취하여 산도를 7.5~8 M로 조절하였다. 10 mg의 우라늄이 함유되어 있는 용해용액을 무게로 취하여 20 mL 용량의 마개 달린 유리용기에 넣은 후 확립된 핵분열생성물 분석절차[10]에 따라 Pu, U 및 Am을 분리하고 Sr, Ba, Cd과 La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Y을 군으로 회수하였다. 두 군의 표준 검정용액을 사용하여 (1 군; Ba, Sr 및 Cd, 2 군; La, Ce, Pr, Sm, Eu, Gd, Nd 및 Y) 두점법 (two point calibration)으로 ICP-AES를 검정한 후 각각 3 회씩 핵분열생성물의 양을 측정하였다.

2.4. 표준물첨가법에 의한 분석신뢰도 평가

35,139±1098 MWD/MtU 연소도의 경수로 사용후핵연료와 DUPIC 소결체 펠렛을 대상으로 “2.3 핵분열생성물 분리 및 정량”에서 기술한 분석절차에 따라 측정된 핵분열생성물 함량을 기준으로 첨

가시킬 표준물의 양을 결정하고 Table 2에서와 같은 1 M HNO₃ 매질의 표준물 혼합용액을 제조하였다. 40 mg의 U이 함유되어 있는 경수로 사용후핵연료 용해용액으로부터 Pu을 분리한 후 용출액을 무게로 4 등분한 다음 표준물 혼합용액을 Table 3에서와 같이 첨가하였다. 그리고 핵분열생성물 분리 및 정량절차에 따라 핵분열생성물을 분석하고 표준물첨가곡선을 작성하였다.

2.5. 내부 표준물첨가법에 의한 분석신뢰도 평가

35,139±1098 MWd/MtU 연소도의 경수로 사용후핵연료를 대상으로 40 mg의 U이 함유되어 있는 용해용액에 내부 표준물로 Tb을 40 µg 첨가하고 Pu을 분리한 후 용출액을 무게로 4 등분한 다음 표준물 혼합용액을 Table 3에서와 같이 첨가하였다. DUPIC 소결체 펠렛의 경우에는 Pu 분리후 용출액을 4 등분하고 내부표준물로 Tb을 7.3 µg씩 첨가하였다. 그리고 핵분열생성물 분리 및 정량절차에 따라 분석하고 첨가한 양과 회수한 양의 비로 신뢰도를 평가하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 핵분열생성물 정량

15,000~35,000 MWD/MTU 연소도 범위의 경수로 사용후핵연료 3 개를 각각 3 회 분석하고 핵분열생성물의 양과 연소도와의 관계를 Table 4에 나타내었다. 상대표준편차는 5% 보다 작았으므로 분석기술은 매우 재현성이 있다고 평가할 수 있다. 한편, Origen2 전산코드로 계산한 결과와 비교해보면 Pr, Sm, Ba 및 Cd를 제외하고 La, Ce, Nd, Eu, Gd, Y 및 Sr은 ±10% 범위에서 일치하는 결과를 얻었다. Pr, Sm, Ba 및 Cd의 경우 Origen2 전산코드로 계산한 결과와 편차가 큰 원인을 확인하기 위하여 35,165±1099 MWd/MtU 연소도의 경수로 사용후핵연료와 유사한 연소도의 경수로 사용후핵연료(35139±1098 MWd/MtU)와 분석결과를 비교하였다. Pr의 경우에는 Fig. 1에서와 같이 Pr의 분석파장(417.939 nm)이 분광학적으로 간섭을 받고 있음이 확인되었으므로 감도는 작지만 분광학적 간섭이 없는 414.331 nm의 방출선을 분석선으로 선택하였으며, Sm의 경우에는 분석선 좌측과 우측의 바탕값 보정 위치를 변경시켰다.

약 5 개월 간격으로 유사한 연소도의 경수로 사용후핵연료 분석하고 그 비를 Table 5에 나타내었다. Pr의 경우에는 여전히 Origen2 전산코드로 계산한 결과와 큰 편차를 보였으며, Sm의 경우에는 Origen2 전산코드로 계산한 자료와 매우 유사한 결과를 얻었다. Cd의 경우에는 Origen2 전산코드로 계산한 자료보다 작은 결과를 얻은 이유는 원자로 운영 중 높은 온도를 유지하는 경수로 사용후핵연료 내부에서 Cd의 휘발에 의한 것으로 판단되며, Ba(28%), Pr 및 Nd(12.3%)를 제외하고 대부분 6.0~9.3% 범위의 편차를 나타냈다.

한편, 동일한 DUPIC 소결체 시편을 5 개월 간격으로 그 결과를 비교하여 분석기술의 정밀도를 평가하였다. Table 6에 나타낸 바와 같이 Pr, Sm 및 Ba 뿐만 아니라 대부분의 핵분열생성물의 경우 두 분석결과가 -3.6~+2.4% 범위에서 매우 잘 일치하였으며, Cd의 경우 역시 낮은 분석결과인 Cd이 높은 온도를 유지하는 OREOX(Oxidation and Reduction of Oxide Fuel) 공정에서 대부분 휘발

될 수 있음을 나타낸다. 따라서 본 연구에서 확립한 분석기술은 매우 정밀하다고 판단할 수 있으며 DUPIC 소결체 시편의 경우 OREOX에 의한 분말 제조 및 소결체 제조공정에서 시료가 잘 섞이고 균질하게 되어서 재현성이 있는 분석결과를 얻을 수 있었다고 판단한다.

3.2. 표준물첨가법에 의한 분석신뢰도 평가

분석하고자 하는 성분에 대해서 아는 양의 표준물을 시료에 첨가한 시료와 첨가하지 않은 시료를 분석하여 얻은 결과를 비교하여 확립된 분석기술의 고유한 계통오차를 줄이거나 오차범위를 확인할 수 있다. 표준물첨가법이라고 알려져 있는 이 방법은 사용후핵연료와 같은 매질의 표준기준물질(standard reference materials, SRM)이 없을 때 흔히 사용하는 방법으로서 표준물첨가 시료와 첨가하지 않은 시료 사이에서 얻은 분석결과와의 편차가 적을수록 계통오차가 적고 확립된 분석기술의 정확도가 크다고 평가할 수 있다. 이를 위하여 35139 ± 1098 MWd/MtU 연소도의 경수로 사용후핵연료와 DUPIC 소결체 시편을 대상으로 표준물의 양이 각각 다른 4 개의 시료를 준비하고 ICP-AES로 측정된 핵분열생성물의 방출선 세기 (emission line intensity)를 첨가한 표준물의 양에 대해 도시한 표준물첨가곡선으로부터 핵분열생성물의 양을 계산한 후 표준물을 첨가하지 않은 시료로부터 얻은 분석결과와의 비를 Table 7과 8에 나타내었다.

경수로 사용후핵연료의 경우 표준물 첨가와 비첨가 시료로부터 얻은 분석결과와의 차이는 Ba과 Nd를 제외하고 $-5.6 \sim +7.4\%$ 범위에서 잘 일치하는 결과를 얻었다. Ba과 Nd의 경우에는 4 개의 분석시료 중 각각 한 개에서 불확실한 결과가 얻어짐으로서 표준물첨가법으로 계산한 분석결과를 신뢰할 수 없었다. 한편, DUPIC 시료의 경우 대부분 $-4.2\% \sim +6.9\%$ 범위에서 잘 일치하는 결과를 얻었다. 따라서 본 분석기술은 정밀도 5% 이하 그리고 약 $\pm 7\%$ 범위의 정확도를 갖는다고 평가할 수 있다.

3.3. 내부표준물 첨가법에 의한 분석신뢰도 평가

$35,139 \pm 1098$ MWd/MtU 연소도의 경수로 사용후핵연료와 DUPIC 소결체에 거의 남아있지 않고 La 및 Ce 등과 같은 핵분열생성물과 화학특성이 거의 같아서 음이온과 추출 크로마토그래피에 의한 분리거동이 유사한 Tb을 내부표준물로 선택하여 시료용액에 일정한 양을 첨가한 후 동일한 조건에서 분석하여 첨가한 양과 회수된 양을 비교함으로써 분석기술의 신뢰도를 평가할 수 있다. Table 9에 나타낸 바와 같이 정량적으로 Tb이 회수됨으로서 본 연구에서 확립한 분석기술이 매우 신뢰할 수 있다고 평가되었다.

결론

사용후 경수로 핵연료 및 DUPIC 소결체 펠릿에 미량 함유되어 있는 핵분열생성물(Sr, Ba, Cd, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd 및 Y)의 분석기술을 확립하고 분석신뢰도를 평가하였다. $15,000 \sim 35,000$ MWd/MtU 연소도 범위의 경수로 사용후핵연료의 경우 핵분열생성물 분석결과와의 상대표준

편차(n=3)는 5% 보다 작았다. Origen2 코드로 계산한 결과와 비교해보면 Pr, Sm, Ba 및 Cd를 제외하고 La, Ce, Nd, Eu, Gd, Y 및 Sr은 $\pm 10\%$ 범위의 편차를 나타내었다. Pr과 Sm이 큰 편차를 보이는 원인은 각각 분광학적 간섭과 부적절한 바탕값 보정에 있었던 것으로 확인되었다. 약 5개월 간격으로 $35,139 \pm 1098$ 및 $35,165 \pm 1099$ MWd/MtU 경수로 사용후핵연료를 분석하고 그 비를 비교해 본 결과 Ba(+28.0%), Gd(+14.1%) 및 Nd(12.3%)를 제외하고 대부분 10% 미만의 편차를 나타내었다.

동일한 DUPIC 소결체 펠렛을 5개월 간격으로 분석한 결과를 살펴보면 Pr, Sm 및 Ba 뿐만 아니라 대부분의 핵분열생성물의 경우 두 분석결과의 비가 $-3.6 \sim +2.4\%$ 범위에서 매우 잘 일치하였다. Cd의 경우 낮은 결과는 높은 온도를 유지하는 OREOX(Oxidation and Reduction of Oxide Fuel) 공정 중 대부분의 Cd이 휘발될 수 있음을 나타낸다. 따라서 본 연구에서 확립한 분석기술은 매우 정밀하다고 판단할 수 있으며 DUPIC 소결체 펠렛의 경우 OREOX 공정에 의한 분말 제조 및 소결체 제조공정에서 시료가 충분히 균질하게 되어서 재현성이 있는 분석결과를 얻을 수 있었다고 판단한다.

$35,139 \pm 1098$ MWd/MtU 연소도의 경수로 사용후핵연료를 대상으로 표준물첨가법으로 얻은 분석결과의 차이는 $-5.6 \sim +7.4\%$ 범위에서 잘 일치하는 결과를 얻었다. 한편, DUPIC 소결체 펠렛의 경우에도 $-4.2\% \sim +6.9\%$ 범위에서 잘 일치하는 결과를 얻음으로서 본 분석기술로 정밀도 5% 이하 그리고 정확도 $\pm 7\%$ 범위에서 조사핵연료에 함유되어 있는 핵분열생성물을 분석할 수 있다고 판단된다. 한편, 내부표준물로 첨가한 Tb의 정량적 회수결과도 본 연구에서 확립한 분석기술을 신뢰할 수 있음을 나타낸다.

참고문헌

1. K. Kato, Atomic Spectroscopy, 7, 129 (1986).
2. Annual book of ASTM Standards, Vol. 12.01, American Society for Testing and Materials, Philadelphia, PA, 1996, Method ASTM C 761-96.
3. H. J. Ache, J. Radioanal. Nucl. Chem., 124, 415 (1988).
4. M. C. Edlson and E. L. Dekalb, Ames Laboratory Report IS-M-61 (1989).
5. P. W. J. M. Boumans, Spectrochim. Acta, 35B, 57 (1980).
6. E. Michaud and J. M. Mermet, Spectrochim. Acta, 37B, 145 (1982).
7. I. B. Brenner, S. Erlich and H. Eldad, ICP information Newsletr., 10, 451 (1984).
8. C. E. Pietri, B. P. Freeman and J. R. Weiss, The quantitative Ion Exchange Separation of Plutonium from Impurities, NBL-298, P 5 (1981).
9. Chang Heon Lee, Moo Yul Suh, Kae Chun Choi, Yang Soon Park, Kwang Yong Jee and Won Ho Kim, Anal. Sci. Tech., 13, 474 (2000).
10. Chang Heon Lee, Moo Yul Suh, Kwang Soon Choi, Jung Suk Kim, Byong Chul Song, Kwang Young Jee, Won Ho Kim, Anal. Chim. Acta, 428, 133 (2001).

Table 1. Operation conditions of ICP-AES/shielding system.

Item	Condition
Radio frequency power, w	1150
Reflected power, w	< 5
Argon gas flow rates	
- Coolant, L/min	14
- Auxiliary, L/min	1.0
- Nebulizer, L/min	0.81
Solution uptake rate, mL/min	1.85
Sample flush time, sec	10
Wavelength range, nm	175~800

Table 2. Chemical composition of mixed standard addition solutions.

Element	Concentration, mg/L	
	Standard addition mixture-1	Standard addition mixture-2
Sr	4	-
Ba	4	-
Cd	3	-
La	3	-
Ce	3	-
Pr	3	-
Nd	-	3
Sm	-	4
Eu	-	2
Gd	-	2
Y	-	3

Table 3. Amount of standards added in sample solutions.

Element	Added metal element, μg			
	Sample-0	Sample-1	Sample-2	Sample-3
Sr	0	4	8	12
Ba	0	4	8	12
Cd	0	3	6	9
La	0	3	6	9
Ce	0	3	6	9
Pr	0	3	6	9
Nd	0	9	6	3
Sm	0	12	8	4
Eu	0	6	4	2
Gd	0	6	4	2
Y	0	9	6	3

Table 4. Quantitative ratios of fission products to uranium in spent PWR fuels of different burnups.

FP	15,604±488 MWd/MtU				26,880±840 MWd/MtU				35,165±1099 MWd/MtU			
	FP/U, $\mu\text{g}/\text{mg}$		ICP/	RSD	FP/U, $\mu\text{g}/\text{mg}$		ICP/	RSD	FP/U, $\mu\text{g}/\text{mg}$		ICP/	RSD
	Origen2	ICP-AES	Origen2	(%)	Origen2	ICP-AES	Origen2	(%)	Origen2	ICP-AES	Origen2	(%)
La	0.605	0.658	1.088	2.2	1.037	1.117	1.077	0.8	1.352	1.488	1.101	0.3
Ce	1.166	1.141	0.979	0.2	2.012	1.929	0.959	1.0	2.631	2.575	0.979	1.2
Pr	0.560	0.270	0.482	0.4	0.955	0.429	0.449	0.8	1.237	0.546	0.441	0.3
Nd	2.004	1.848	0.922	1.5	3.434	3.137	0.914	1.2	4.486	4.127	0.920	0.2
Sm	0.471	0.342	0.726	0.7	0.848	0.567	0.669	1.4	1.143	0.747	0.654	0.1
Eu	0.046	0.047	1.021	0	0.098	0.104	1.061	1.2	0.146	0.155	1.062	0
Gd	0.024	0.021	0.875	6.7	0.082	0.090	1.098	1.8	0.148	0.163	1.101	1.4
Y	0.251	0.247	0.984	0.4	0.405	0.385	0.951	1.1	0.502	0.488	0.972	0.3
Sr	0.416	0.432	1.038	3.3	0.672	0.667	0.993	0.8	0.838	0.849	1.013	0.9
Ba	0.822	0.965	1.174	4.0	1.463	1.703	1.164	1.8	1.960	2.004	1.022	0.5
Cd	0.032	0.019	0.594	0	0.079	0.053	0.671	5.5	0.126	0.093	0.738	1.3

Table 5. Ratios of fission products in two spent PWR fuels of different burnups.

FP	FP/U, $\mu\text{g}/\text{mg}$					35139/35165 MWd/MtU
	Origen2	35139±1098 MWd/MtU		35165±1099 MWd/MtU		
		ICP-AES	ICP/Origen	ICP-AES	ICP/Origen	
La	1.352	1.578	1.167	1.488	1.101	1.060
Ce	2.631	2.785	1.059	2.575	0.979	1.082
Pr	1.237	*1.654	1.337	0.546	0.441	* Wavelength change
Nd	4.486	4.633	1.033	4.127	0.920	1.123
Sm	1.143	*1.089	0.953	0.747	0.654	* Background compensation
Eu	0.146	0.169	1.158	0.155	1.0622	1.090
Gd	0.148	0.186	1.257	0.163	1.101	1.141
Y	0.502	0.523	1.042	0.488	0.972	1.071
Sr	0.838	0.928	1.107	0.849	1.013	1.093
Ba	1.960	2.565	1.309	2.004	1.022	1.280
Cd	0.126	0.101	0.802	0.093	0.738	1.086

Table 6. Quantitative ratios of fission products to uranium in DUPIC sintered pellet.

FP	FP/DUPIC sintered pellet, $\mu\text{g}/\text{mg}$					Test-1/Test-2
	Origen2	Test-1 (2000. 3. 20)		Test-2 (2000. 8.17)		
		ICP-AES	ICP/Origen2	ICP-AES	ICP/Origen2	
La	1.130	1.212	1.073	1.202	1.064	1.008
Ce	2.200	2.178	0.990	2.126	0.966	1.024
Pr	1.040	1.266	1.217	1.250	1.202	1.013
Nd	3.730	3.575	0.958	3.575	0.958	1.000
Sm	0.757	0.825	1.090	*0.826	1.091	0.999
Eu	0.129	0.131	1.016	0.128	0.992	1.023
Gd	0.114	0.139	1.219	0.136	1.193	1.022
Y	0.424	0.424	0.000	0.417	0.983	1.016
Sr	0.685	0.664	0.969	0.665	0.971	0.998
Ba	1.690	1.622	0.960	1.683	0.996	0.964
Cd	0.0312	<0.0002	-	<0.0002	-	-

Table 7. Evaluation of determination reliability of fission products in spent PWR fuel (35139 ± 1098 MWd/MTU).

FP	FP/U, $\mu\text{g}/\text{mg}$		No addition/addition	Correlation coefficient
	Standard addition	No addition		
La	1.625	1.578	0.975	0.99842
Ce	2.765	2.785	1.004	0.99977
Pr	1.701	1.654	0.971	0.99884
Nd	*3.863	4.633	1.199	0.99235
Sm	1.019	1.089	1.068	0.99702
Eu	0.162	0.168	1.037	0.99982
Gd	0.189	0.186	0.984	0.99980
Y	0.487	0.523	1.074	0.99941
Sr	0.971	0.928	0.959	0.99991
Ba	*2.902	2.565	0.883	0.99990
Cd	0.107	0.101	0.944	0.99998

Table 8. Determination reliability of fission products in DUPIC sintered pellet.

Element	FP/DUPIC sintered pellet, $\mu\text{g}/\text{mg}$		No addition/addition	Correlation coefficient
	Standard addition	No addition		
La	1.240	1.202	0.998	0.99903
Ce	2.116	2.124	1.004	0.99853
Pr	1.230	1.250	1.016	0.99971
Nd	3.342	3.575	1.069	0.99921
Sm	0.830	0.826	0.995	1.00000
Eu	0.124	0.128	1.032	0.99995
Gd	0.142	0.136	0.958	0.99994
Y	0.416	0.417	1.002	0.99878
Sr	0.674	0.665	0.987	0.99951
Ba	1.632	1.683	1.031	0.99611
Cd	0.0012	< 0.002	-	0.99992

Table 9. Recovery yield of internal standard added in dissolver solutions of spent PWR fuels and DUPIC sintered pellet.

Sample	Addition number	Added, μg	Found μg	Found/Added	RSD, %
Spent PWR fuel	Sample-0	10.06	9.52	0.95	0.86
	Sample-1	9.96	9.86	0.99	0.39
	Sample-2	9.78	9.62	0.98	0.18
	Sample-3	10.02	9.64	0.96	0.15
DUPIC sintered pellet	Sample-0	7.3	7.2	0.99	0.63
	Sample-1	7.3	7.6	1.04	0.54
	Sample-2	7.3	7.5	1.03	0.51
	Sample-3	7.3	7.4	1.01	0.50

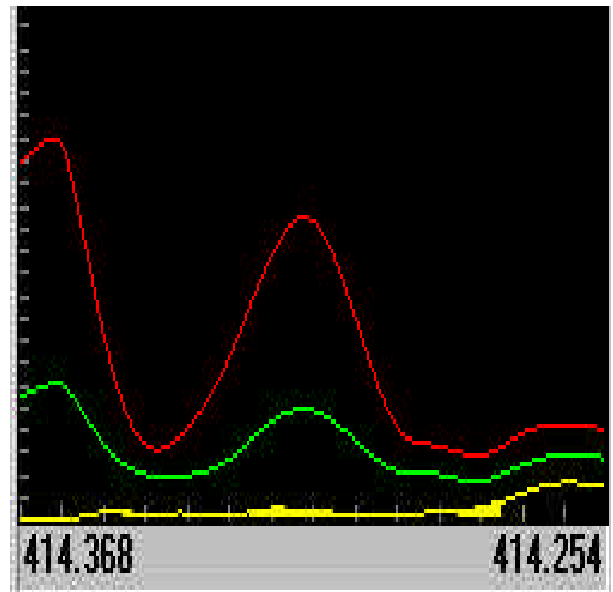
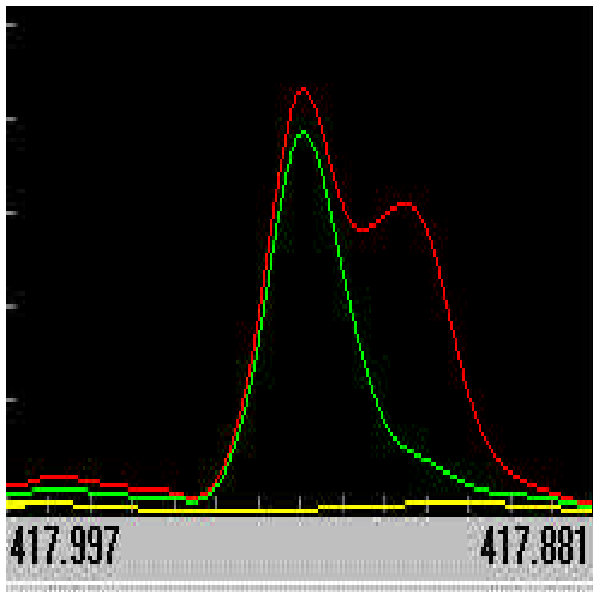


Fig. 1. Spectral Interference on Determination of Pr. Left side; spectrum of Pr (417.939 nm), right side; spectrum of Pr (414.311 nm). Blank; 3 M HNO₃ standard; 0.5 mg/L, test; fraction of lanthanide separated from DUPIC sintered pellet dissolver solution.