

수증기증류를 이용한 모의사용후핵연료 중 브롬 및 요오드 동시분리 및 정량

김정석, 김현정, 박순달, 전영신, 한선호, 송규석
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 1045
 niskim1@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후 핵연료 중의 총 요오드 및 요오드 동위원소 분석은 사용후 핵연료 중에 함유된 핵분열 생성물의 관리, 방사성 요오드의 회수, 핵연료 처분 및 환경으로의 방출, 배기체 처리시설의 설계와 관련된 폐기물처리와 흡착제사용에 대한 중요한 기초자료로 활용된다. 요오드는 주요 핵분열 생성물로서 핵연료 피복관의 스트레스 부식균열을 일으키고 CsI 등 핵연료 성분원소와 휘발성 화합물을 형성하는 것으로 알려졌다. 핵연료 중의 요오드는 화학적 조건에 따라 휘발 및 비휘발성 특성을 가지며, iodide와 iodate 등 여러 산화상태 혹은 유기성 요오드로 존재하기 때문에 요오드의 거동은 매우 복잡하다. 핵연료 중에 함유된 여러 할로겐원소(F, Cl, Br, I)들의 정량에는 먼저 수증기증류(steam distillation) 및 열가수분해(pyrohydrolysis) 방법으로 이들 원소들을 분리한 후 원소별 여러 분석방법(이온 크로마토그래피, 중성자방사화 분석, 유도쌍 플라즈마 질량분석, 감마선 분광분석, X선 형광분광법, 분광 광도법 및 이온선택 전극 등)으로 정량하고 있다.

본 연구에서는 핵연료 중에 함유된 할로겐원소들의 분리 및 정량법을 개발하기 위하여 브롬 및 요오드를 포함한 표준시료 및 모의사용후핵연료 시료를 준비하였다. 원격작업으로 설치 및 운전이 용이하도록 조립식의 수증기증류장치를 제작 설치하였다. 본 장치를 이용한 최적의 증류조건[1]으로 표준시료 및 모의사용후핵연료 시료로부터 브롬 및 요오드를 순수하게 분리하였으며 이온 크로마토그래피 및 적정법으로 각각을 정량하여 회수율을 측정하고 증류거동을 조사하였다.

2. 실험 및 결과

2.1 시료 준비

모의사용후핵연료는 주요 핵분열생성물원소 화합물을 혼합하여 준비하였으며 여기에 브롬(706 μ

g/mL) 및 요오드(200 μg/mL) 표준용액을 일정량을 혼합 첨가하여 시료로 이용하였다. 비교실험을 위하여 제조한 2종의 표준용액 일정량을 혼합하여 표준시료로 이용하였다.

2.2 수증기 증류장치 설치

표준시료 및 모의사용후핵연료시료로부터 브롬 및 요오드 분리를 위해 제작 설치한 수증기증류장치의 모형은 아래 Fig. 1과 같다. 증류장치는 수증기 발생장치, 증류플라스크 및 가열장치, 와그너 밸브, 냉각기 및 수집용기로 구성되었다.

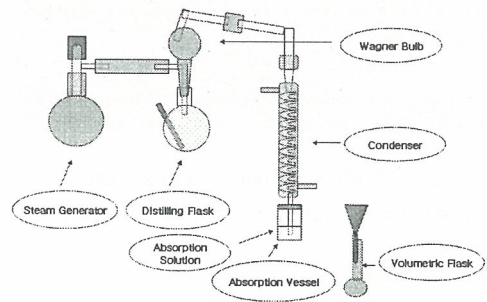


Fig. 1. Steam distillation apparatus for separation of halogen.

2.3 수증기증류에 의한 브롬 및 요오드 회수

증류플라스크에 모의사용후핵연료시료 혹은 브롬 및 요오드 표준용액 일정량을 넣고 혼합산용액 24 mL, 즉, 0.2 M ferrous ammonium sulfate-0.5 M sulfamic acid 용액 3 mL, 진한 인산(85%) 6 mL 및 진한 황산(sp gr 1.84) 15 mL를 순차적으로 가한다. 0.2 M ferrous ammonium sulfate-0.5 M sulfamic acid 용액은 ASTM C 799-99에 제시된 방법에 준하여 제조하였다[2]. .

2.4 증류에 따른 브롬 및 요오드 회수거동 조사

수증기증류에 따른 휘발 브롬 및 요오드의 회수거동을 조사하기 위하여 준비한 표준시료를 이용하여 수증기증류를 수행하였다. 10 mL 용량플라

스크 8 개를 준비하여 냉각기를 거쳐 수집되는 증류용액을 각각 10 mL씩 총 80 mL를 수집하였다. 각각의 시료에 대해 함유된 브롬 및 요오드를 이온 크로마토그래피로 정량하여 증류에 따른 각 원소의 회수거동을 조사하였다.

2.5 증류에 따른 브롬 및 요오드 순수분리 조사
 매질 및 타원소의 간섭없이 수증기증류에 의하여 브롬 및 요오드가 순수하게 분리되는 것을 확인하기 위하여 표준시료 및 모의사용후핵연료 시료로부터의 증류용액 일정량에 AgNO_3 를 가하여 침전물로 만든 다음 여과 및 건조 후 미세탐침분석(EPMA)을 수행하였다(Fig. 2).

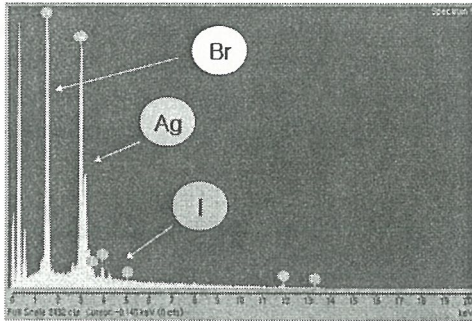


Fig. 2. X-ray spectrum for a precipitate produced after AgNO_3 addition into distillate.

2.6 분리용액 중 브롬 및 요오드 정량

수증기증류에 의하여 표준시료 및 모의사용후핵연료시료로부터 분리한 브롬 및 요오드는 일정 부피로 조정된 후 정량 및 회수율을 측정하였다. 브롬 및 요오드의 개별정량은 이온 크로마토그래피를 이용하였으며 비교분석을 위한 총 할로젠농도(bromide + iodide) 정량은 fluorescein 지시약과 0.1 M AgNO_3 용액을 이용한 적정법으로 수행하였다.

3. 결론

조사핵연료의 주요 핵분열생성물이면서 휘발성의 특성을 갖고 용액 중에서는 여러 산화상태로 존재하는 요오드 및 핵연료 내에 미량 함유되어 있는 브롬은 일반 화학적 방법으로 분리 및 정량이 매우 어렵다. 본 수증기증류 방법을 이용할 경우 할로젠원소를 휘발시켜 묶은 산용액으로 회수

하여 정량하므로 화학적 진척리가 간결하고 매우 효과적인 것으로 판단된다. 분리용액을 직접 이온 크로마토그래피로 정량하거나 침전분리 후 방사능계측 혹은 X선 형광분광법으로 정량할 수 있으므로 조사전 후 핵연료시료 및 방사성폐기물시료 중의 브롬 및 요오드 정량에 효과적으로 응용할 수 있을 것으로 기대된다.

4. 참고문헌

[1] J. S. Kim et al., Analytical Science & Technology, Vol. 23, No. 1, pp. 45-53, 2010
 [2] ASTM C 799-99, Annal Book of ASTM Standards, Vol. 12.01, pp. 196-209, 1999