

탈이온화 및 액체섬광계수법을 이용한 폐피복관 침출용액 중 트리튬 분리 및 정량

김정석, 김영복, 김홍우, 박용준

한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 989번길 111

niskim1@kari.re.kr

1. 서론

조사핵연료 중의 트리튬(^3H)은 확산에 의해 방출되며 피복관에 침투하고 zircaloy의 경우 수화물로서 남아있으므로 핵연료의 연소기동과 건전성 측면에서 중요하다. 트리튬은 주로 가벼운 원소들의 중성자방사화, 즉, $^2\text{H}(n,\gamma)^3\text{H}$, $^{10}\text{B}(n, 2\alpha)^3\text{H}$ 등의 핵반응에 의하여 생성된다. 액체 유출물이나 수증기 상태인 경우 주로 HTO, 기체유출물인 경우 주로 HT 형태로 방출되는 것으로 알려져 있다. 따라서 폐피복관(hull, cladding waste)내 트리튬 측정에는 조사핵연료의 연소특성 규명, zircaloy의 제염 및 중저준위 폐기물화, 재활용 등과 관련된 기초자료로 활용될 수 있다. 트리튬의 측정기술로는 알루미늄, 분자체, 실리카겔 등의 흡착체를 이용한 기체크로마토그래피, 액체섬광계수기(liquid scintillation counter)와 비례계수기 등을 이용한 방사능계측 방법 및 질량분석기를 이용하는 방법 등이 연구되어 왔다. 트리튬은 저에너지의 베타입자만을 방출하므로 액체섬광계수기를 이용한 베타계수법으로 정량할 경우 여러 다른 방사성핵종들이 간섭하게 된다. 따라서 정량에 앞서 트리튬을 간섭핵종들로부터 분리하기 위하여 HTO 형태로 증류시키는 방법이 이용되어 왔다. 그러나 이 방법의 경우 휘발성의 할로젠과 회유기체가 증류액 중에 잔류하여 간섭하는 것으로 알려졌으며, 완전한 제거를 위한 별도의 화학적 처리를 필요로 하였다. 방사성핵종의 이온교환분리에 무기화합물(무기이온 교환체)을 이용하는 방법은 원자력을 포함한 여러 산업분야에 많이 응용되어 왔으며 고온, 방사선 및 산화에 상당히 안정한 장점을 가지고 있다. 고연소핵연료의 폐피복관시료는 고방사성이므로 시료 중의 트리튬 분리 및 분석시료 준비를 위한 전처리를 핫셀을 이용한 원격작업으로 수행해야 하므로 어려운 점이 따르며 오염가능성을 내포하고 있다.

본 연구에서는 고연소 사용후핵연료의 공정에서 핵연료를 봉으로부터 탈피복 후 회수한 폐피복관 시편을 분석시료로 이용하였다. 트리튬

등 폐피복관 내부로 침투한 여러 핵종을 분석하기 위하여 폐피복관 시편을 질산용액으로 침출하고 침출용액을 화학분석 중에 있다. 본 연구에서는 폐피복관 시편 2종의 침출용액을 선정하여 양이온과 음이온 각각 및 혼합 이온교환체, 화학적 처리를 하여 제조한 가수된 지르코니아 이온교환체를 이용하여 탈이온화(deionization) 법으로 간섭원소들을 분리하여 제거하고 용액 중의 트리튬을 HTO 형태로 회수하여 액체섬광계수법으로 정량해 보았다.

2. 실험 및 결과

2.1 탈이온화 이온교환체 준비

폐피복관시료 중의 트리튬 분리 및 정량을 위한 준비와 예비실험은 당 연구실에서 사용후핵연료 중의 트리튬 분리 및 정량을 위하여 앞서 발표한 방법[1]을 수정 및 보완하여 수행하였다. 트리튬 정량의 간섭원소들을 탈이온화시키기 위한 양이온과 음이온 교환체 및 혼합이온 교환체로는 Bio-Rad사의 AG 50WX8(100-200 mesh), AG 1X8(100-200 mesh) 및 Sigma사의 Amberlite MB-150을 사용하였다. 분리한 트리튬의 정제를 위한 고다리결합 양이온 및 음이온 교환체로는 Aldrich사의 Amberlite-120(plus) 겔타입과 Bio-Rad사의 AGMP-1을 사용하였으며, 무기이온 교환체는 시판 ZrO_2 (Aldrich사)를 이용 앞서 소개한 방법[1]에 따라 가수된 지르코니아(hydrous zirconia)를 제조하여 사용하였다.

2.2 실험 절차

폐피복관시료 중의 트리튬 분리 및 정량을 위하여 수행한 전반적인 실험절차는 Fig. 1과 같다. 침출용액 일정량을 취하여 배치 및 분리관법으로 탈이온화 및 정제를 하여 트리튬을 수집하고 방사능계측을 위한 시료를 준비하였다. 시료용액 일정량을 취하여 섬광체(Ultima-gold, 15 mL)와 혼합 후 액체섬광계수기로 방사능을 측정하여 트리튬을 정량(Table 1)하고 동일시료에 대하여 감마

선분광계로 방사능을 측정하여 간섭핵종을 조사하였다.

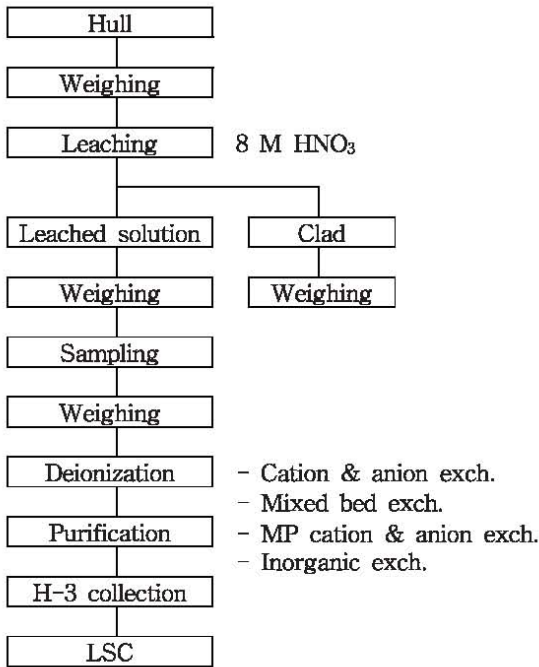


Fig. 1. Flow diagram for the determination of tritium in leached solution of hull.

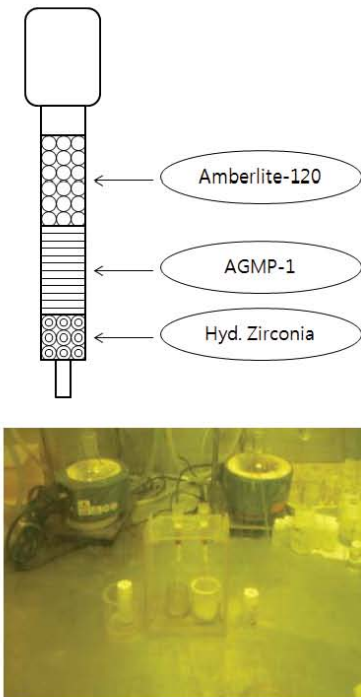


Fig. 2. Chromatographic columns installed in hot cell for purification of tritium.

Table 1. Determination of tritium in leached solutions of hull.

| Sample | Found, Bq/mL | Average | % RSD |
|--------|--------------|------------|-------|
| 1-1 | 124.5±1.6 | 124.1±1.6 | 0.6 |
| 1-2 | 123.2±1.6 | | |
| 1-3 | 124.6±1.6 | | |
| 2-1 | 2249.6±6.5 | 2281.9±6.6 | 2.0 |
| 2-2 | 2334.0±6.8 | | |
| 2-3 | 2263.6±6.6 | | |

2.3 트리튬 분리 및 회수율 측정

예비실험 결과, 0.4 M HNO₃ 용액을 용리액으로 사용한 상기의 매트 및 분리관법으로 모의용액 중의 간섭원소를 탈이온화시키고 트리튬을 회수하였을 때 회수율은 99% 이상으로 시료 중의 트리튬은 HTO 형태로 거의 전량 회수할 수 있었다. 트리튬 정제를 위해 무기이온교환체로서 사용한 가수된 지르코니아는 화학 및 열처리 과정으로 입자크기를 증가시키고 난용성물질로 만들어 이온교환분리에 적합하였다. 분리관에 채웠을 때 제조 전 ZrO₂보다 유속도 빠르고 수용액 및 묽은 산에 의하여 용해되지 않았다. 가수된 지르코니아의 좋은 정제효과는 이 무기이온교환체가 양이온 및 음이온 교환체 기능을 모두 갖고 있기 때문인 것으로 판단되었다.

3. 결론

폐피복관시료 중에는 불순물로서 남아있는 미량의 핵연료, PCI에 의한 침투핵종 및 방사화 등에 의한 무거운 원소와 여러 핵분열생성물을 포함하고 있다. 폐피복관시료 중의 대부분의 트리튬은 본 연구의 방법으로 분리 및 정량이 가능하다. 그러나 보다 정확한 트리튬 총량을 정량하기 위해서는 침출 후 폐피복관을 고온 가열시킨 후 트리튬을 포집 및 정량하는 잔류여부를 검토해 보아야 한다. 본 연구의 트리튬 분리 및 정량법은 조사핵연료 및 방사성폐기물 시료 중의 트리튬 정량 등에 효과적으로 응용할 수 있을 것으로 판단된다.

4. 참고문헌

[1] J. S. Kim et al., Anal. Sci. Technol., Vol. 18, No. 4, pp. 298-308, 2005.
 [2] PNL-ALO-479, Tritium in irradiated cladding materials, 1989.