

## 수산화나트륨 함유 핵연료용액 중 U, Pu, Nd 분리 및 동위원소 정량

김정석, 전영신, 박순달, 한선호, 하영경, 송규석  
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045  
 njskim1@kaeri.re.kr

## 1. 서론

조사핵연료의 화학분석 및 화학적 연소도를 측정하기 위해서는 화학실험을 이용한 조사핵연료의 용해가 선행되어야 한다. 조사핵연료 용해는 산용해로 이루어지며 용해장치는 휘발기체 포집장치와 함께 화학실험 내에 설치되어야 한다. 조사핵연료 용해 중 발생하는 C-14, 요오드(I-129) 및 NOx 기체를 포집하기 위하여 수산화나트륨(NaOH) 용액을 함유한 포집장치를 많이 이용하고 있다. 수산화나트륨 포집용액은 포집효과가 매우 양호하나 핵연료용액 중 격렬한 반응이 일어나거나 과량의 용액이 포집장치에 적재되었을 경우 환류용해 중에 질산매질의 핵연료용액에 유입될 수 있다. 알칼리족원소를 포함하는 수산화나트륨용액이 핵연료용액에 유입될 경우 핵연료 중의 악티늄족 및 란타넘족 원소의 화학적 분리를 간섭하므로 결국 화학적 연소도측정 및 핵연료 중의 U, Pu 및 Nd 동위원소정량이 어렵게 된다. 따라서 수산화나트륨을 함유한 핵연료용액 중의 U, Pu 및 Nd 동위원소를 정량하기 위해서는 질산매질의 핵연료용액으로부터 확립한 분리도해에 대하여 시료전처리 및 화학적 분리과정이 보완 및 수정되어야 한다.

본 연구에서는 화학적 연소도측정 및 U, Pu, Nd 동위원소정량을 위하여 국내 원전으로부터의 PWR 조사핵연료시료를 질산용해하는 과정에 격렬한 반응에 의하여 휘발기체 포집장치의 수산화나트륨용액이 소량 유입된 핵연료용액을 얻게 되었으므로 이 용액으로부터 기 확립된 분리도해를 보완한 방법으로 U, Pu 및 Nd를 분리 및 정제하였으며, 3중 스파이크( $^{233}\text{U}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{150}\text{Nd}$ )를 이용한 동위원소희석 질량분석법으로 정량한 내용을 기술하였다.

## 2. 실험 및 결과

본 연구의 조사핵연료 중의 U, Pu 및 Nd 동위원소정량을 위한 화학적 분리는 당 연구실에서 확립한 분리과정을 보완 및 수정하여 적용하였다. 수산화나트륨을 함유한 핵연료시료 및 3중 스파이크를 첨가한 핵연료시료 중의 U, Pu 및 Nd를 Fig. 1, 2, 3 및 4의 과정에 따라 분리하였다. 먼저 Fig. 1의 과정에 따라 산처리 및 산화수조절 후 음이온교환수지 상에서 알칼리족원소(수산화나트륨)를 포함한 핵분열생성물과 U+Pu fraction을 각각 분리하였다. 분리된 알칼리족원소를 포함한 핵분열생성물은 Fig. 2의 과정에 따라 산처리 및 침출과정을 거쳐 양이온교환수지 상에서 희토류원소만을 분리하였다. 이어 Fig. 3의 과정에 따라 산처리를 거친 후 음이온교환수지 상에서 질산-메탄올 용리액으로 화학적성질이 비슷한 희토류원소들 중 Nd만을 순수하게 분리하였다. 분리된 U+Pu fraction은 Fig. 4의 과정에 따라 산처리를 거친 후 음이온교환수지 상에서 U와 Pu를 순수하게 분리하였다. 핵연료시료 및 스파이크첨가 핵연료시료로부터 순수하게 분리한 U, Pu 및 Nd 용액은 농축 후 질량분석을 수행하여 각각의 동위원소조성을 측정하였다. 측정된 각 원소들의 동위원소조성을 이용하여 동위원소희석 질량분석법으로 핵연료시료 중의 U( $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$  및  $^{238}\text{U}$ ), Pu( $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  및  $^{242}\text{Pu}$ ) 및 Nd( $^{143}\text{Nd}$ ,  $^{144}\text{Nd}$ ,  $^{145}\text{Nd}$ ,  $^{146}\text{Nd}$ ,  $^{148}\text{Nd}$  및  $^{150}\text{Nd}$ ) 각 동위원소 및 총량을 정량하였다. Table 1에는 핵연료시료로부터 분리한 U, Pu 및 Nd 동위원소조성을 나타내었다. 동위원소조성간 상관관계를 검토한 결과, 각 원소들은 순수하게 분리되었으며 각 동위원소들에 대한 동중원소들의 간섭은 없는 것으로 확인되었다. Nd 동위원소조성은 질량분석에 따른 질량편차 바이아스와 천연으로부터의 오염을 보정한 결과를 나타내었다. Table 2에는 동위원소희석 질량분석법으로 각각의 동위원소들을 정량한 결과를 핵연료 g당 함유량으로 나타내었다. 이 결과들은 측정 연소도를 기초로 하여 예측한 핵연료 중의 핵종함유량과 비교적 잘 일치하였다.

## 3. 결론

수산화나트륨을 함유한 PWR 사용후핵연료시료 중의 U, Pu 및 Nd를 다단계의 화학적 분리과정으로 순수하게 분리하고 3중 스파이크를 이용한 동위원소희석 질량분석법으로 각각의 동위원소 및 총량을 동시정량할 수 있었다. 본 실험의 핵연료시료 및 스파이트첨가 핵연료시료로부터 양이온 및 음이온교환분리를 위한 산처리 및 산화수조절 조건은 매우 적절한 것으로 판단되었다.

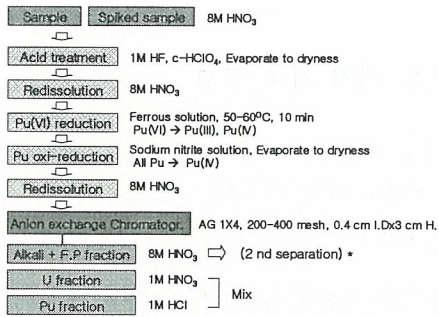


Fig. 1. Analytical Scheme-I for the U, Pu and Nd separations

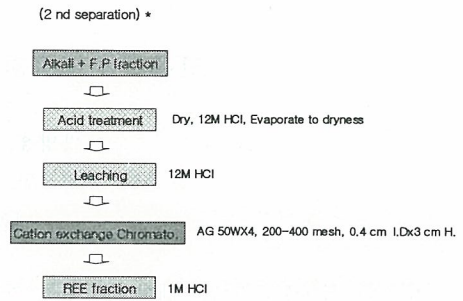


Fig. 2. Analytical Scheme-II for the U, Pu and Nd separations

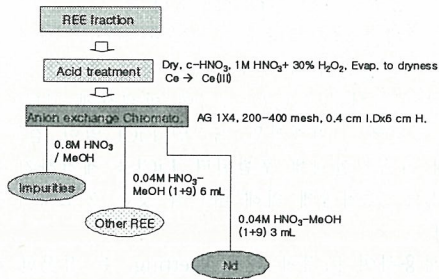


Fig. 3. Analytical Scheme-III for the U, Pu and Nd separations

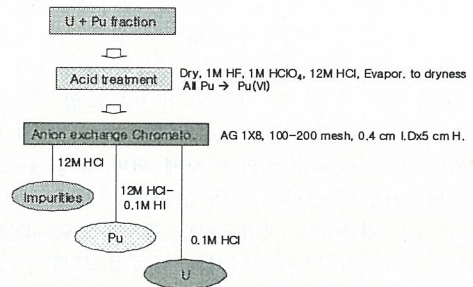


Fig. 4. Analytical Scheme-IV for the U, Pu and Nd separations

Table 1. Isotopic Compositions of U, Pu and Nd Separated from a PWR Spent Fuel Sample

U		Pu		Nd	
Isotope	Atom%	Isotope	Atom%	Isotope	Atom%*
U-234	0.0223	Pu-238	1.9914	Nd-143	18.4028
U-235	0.6453	Pu-239	57.4235	Nd-144	34.0599
U-236	0.4668	Pu-240	26.4773	Nd-145	16.3982
U-238	98.8656	Pu-241	5.6880	Nd-146	17.3366
		Pu-242	8.4198	Nd-148	9.2675
				Nd-150	4.5350

\* Corrected for contribution due to natural contamination and mass discrimination bias

Table 2. Determination of U, Pu, Nd and their Isotopes in a PWR Spent Fuel Sample by Isotope Dilution Mass Spectrometry

U		Pu		Nd	
Isotope	g/fuel-g	Isotope	g/fuel-g	Isotope	g/fuel-g
U-234	0.00018	Pu-238	$0.130 \times 10^{-3}$	Nd-143	$0.603 \times 10^{-3}$
U-235	0.00522	Pu-239	$3.760 \times 10^{-3}$	Nd-144	$1.125 \times 10^{-3}$
U-236	0.00380	Pu-240	$1.741 \times 10^{-3}$	Nd-145	$0.545 \times 10^{-3}$
U-238	0.81053	Pu-241	$0.376 \times 10^{-3}$	Nd-146	$0.580 \times 10^{-3}$
		Pu-242	$0.558 \times 10^{-3}$	Nd-148	$0.315 \times 10^{-3}$
				Nd-150	$0.156 \times 10^{-3}$
Total	0.81973	Total	$6,565 \times 10^{-3}$	Total	$3,324 \times 10^{-3}$