

폐피복관 중 우라늄 및 플루토늄 분리 및 동위원소 정량

김정석, 전영신, 박순달, 김영복, 송병철, 박용준
 한국원자력연구원, 대전시 유성구 대덕대로 989번길 111
 njskim1@kari.re.kr

1. 서론

폐피복관 중에는 중성자에 의한 구성원소와 불순물의 방사화에 의하여 여러 방사화생성물과 핵분열생성물 및 악티늄족원소를 함유하고 있다. 또한 PCI에 의하여 피복관 내부에 핵분열생성물 및 악티늄족원소가 침투하여 잔류한다. 핵연료공정 중의 오염이나 침전물 등에 의한 폐피복관내 잔류물은 산을 이용한 환류 방법으로 제염이 가능하나 폐피복관 내면 산화층에 침투된 핵분열생성물 및 악티늄족원소의 제염은 불충분하다. 이러한 침투 핵분열생성물과 핵연료가 잔류하면 처리공정없이 중저준위폐기물로서 처분이 불가능하다. 따라서 폐피복관의 독성 저감화, 재활용 및 폐기물의 감량화 등과 관련하여 폐피복관 내면으로의 악티늄족원소 침투거동과 함유량 측정은 매우 중요하다. 폐피복관이 스테인레스강인 경우 질산환류 방법으로 효과적으로 제염할 수 있으나, 폐피복관이 지르코늄 합금인 경우 질산환류 방법만으로는 효과적이지 못하며 Meservey 타입 시약 등을 이용해야 한다[1]. 지르코늄합금 핵연료 및 피복관 등의 분석을 위하여 질산-플루오르화수소산 혼합물 등이 시료용해를 위하여 이용되어 왔다[2]. 플루오르화수소산 사용은 지르코늄합금을 효과적으로 용해할 수 있으나 유리용기의 부식으로부터 생성되는 실리카가 화학분석을 위한 시료전처리 및 분리를 방해하므로 효과적인 산용매 설정이 중요하다.

본 연구에서는 폐피복관에 미량 잔류하는 우라늄과 플루토늄을 분리하고 각 성분 동위원소를 정량하는 방법을 개발하고자 하였다. 피복관을 포함한 PWR형 고연소핵연료를 질산용해하고 용액 중에 남은 피복관을 수집하고 세척하여 본 연구의 폐피복관시료로 이용하였다. 폐피복관시료 3개를 준비하여 각기 다른 산용매로 환류시켜 분해한 다음 일정량을 취하여 분석시료(S1, S2, S3)로 이용하였다. 또한 PWR형 핵연료봉을 탈피복하고 소량 절단한 시편을 질산용액으로 침출시킨 후 침출용액 일정량을 취하여 분석시료(S4)로 이용하

였다. 시료전처리와 이온교환분리 방법으로 시료 용액 중의 우라늄과 플루토늄을 순수하게 분리하고 ^{233}U 과 ^{242}Pu 를 스파이크로 이용하는 동위원소 회석 질량분석법으로 폐피복관시료 중의 우라늄과 플루토늄 및 성분 동위원소들을 정량해 보았다.

2. 실험 및 결과

2.1 폐피복관시료 분해 및 분석시료 준비

상기와 같은 과정으로 당 연구실 화학실험에 반입되어 준비된 폐피복관시료(S1, S2, S3)는 시료 중의 우라늄 및 플루토늄을 분리 및 정량하기 위하여 아래와 같이 각각 다른 혼산과 실험조건으로 환류시켜 폐피복관시료를 용해하였다. 용해 용액 일정량 취하여 화학적 분리를 위한 시료로 이용하였다. 시료(S4)는 탈피복한 폐피복관시료 일정량을 8M 질산용액으로 환류 침출시키고 침출 용액 일정량 취하여 화학적 분리를 위한 시료로 이용하였다.

Table 1. Dissolution media for cladding waste samples.

No.	Wt.	Medium
S1	0.165g	3M HNO ₃ -3M HF, 90°C, 24h
S2	0.162g	3M HNO ₃ -2M HF-5M HCl 90°C, 20h
S3	0.154g	1st: 2M HF 25°C 18h, 90°C 4h 2) Aqua regia 8h
S4	0.429g	8M HNO ₃ 90°C, 24h(leaching)

S1, S2 및 S3 시료는 용해 후 용해용기에 실리카의 재침전물과 함께 미량의 불용잔유물이 잔류하였다. S3시료의 경우 실리카 부식을 최소화하기 위하여 2M 플루오르화수소산으로 먼저 실온에서 방치하여 반응시켰다. 이어 가온하여 반응시키고 왕수를 첨가한 다음 계속 가온하여 반응시켰다. 불용잔유물은 대략 3 mg이었으며 98% 이상 용해된 것을 확인하였다. 불용잔유물 조성을 확인하기 위하여 미세탐침분석(EPMA) 및 감마선분광분석

(Fig. 1)을 수행하였으며 그 결과, 주핵종은 ^{60}Co , ^{106}Ru , ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{144}Ce , ^{154}Eu 및 ^{95}Zr 등으로 문헌[1] 상의 내용과 비슷한 결과를 보였다.

