

TBP/XAD-16/HNO₃ 추출 크로마토그래피에 의한 모의 사용후핵연료 용해용액 중 미량 핵분열생성물 원소의 분리

李昌憲* · 崔珖洵 · 金正錫 · 崔桂天 · 池光龍 · 金元浩
한국원자력연구소 원자력화학연구팀
(2001. 5. 3 접수)

Separation of Fission Product Elements from Synthetic Dissolver Solutions of Spent Pressurized Water Reactor Fuels by TBP/XAD-16/HNO₃ Extraction Chromatography

Chang Heon Lee*, Kwang Soon Choi, Jung Suk Kim, Ke Chon Choi,
Kwang Yong Jee, and Won Ho Kim

Korea Atomic Energy Research Institute, Nuclear Chemistry Research Team, Daejeon 305-600, Korea
(Received May 3, 2001)

요 약. 경수로 사용후핵연료에 미량 함유되어 있는 핵분열생성물을 유도 결합 플라스틱마 원자망출분 광법(ICP-AES)으로 분석하기 위하여 우리나라로부터 핵분열생성물을 추출 크로마토그래피로 분리, 회수하는 방법을 검토하였다. 우리나라 분리 분야에서 잘 알려져 있는 tri-*n*-butyl phosphate(TBP)를 추출제로 사용하여 몇 가지 Amberlite XAD 다공성 수지들에 대한 침유능을 비교한 후 TBP 침유량이 가장 큰 Amberlite XAD-16을 지지체로 선택하였다. 사용후핵연료 용해용액과 화학조성이 유사한 모의 사용후핵연료 용해용액을 사용하여 TBP 침유수지에 대한 핵분열생성물 원소들의 흡착거동을 조사하고, 분리에 미치는 여러 변수들을 최적화 하였다. Pd 및 Ru를 제외한 대부분의 핵분열생성물 원소들을 정밀도 3.1% 이하의 범위에서 정량적으로 회수할 수 있었다.

ABSTRACT. A study has been carried out on the extraction chromatographic separation of fission products from spent pressurized water reactor (PWR) fuels for inductively coupled plasma atomic emission spectrometric analysis. Impregnation capacity of tri-*n*-butyl phosphate (TBP), which is well known as an extractant in the field of uranium separation from various nuclear grade materials, on Amberlite XAD polymeric macroporous support materials was measured. Amberlite XAD-16 of which the surface area is the highest was selected as a support material because its TBP impregnation capacity was the largest in Amberlite XADs. Sorption behaviour of this TBP impregnated resin was investigated for the fission product elements using acidic solutions simulated for dissolver solutions of spent PWR fuels. The parameters affecting the performance of the separation system were optimized. The fission product elements studied excluding Pd and Ru were quantitatively recovered with the precision of less than 3.1%.

서 론

사용후핵연료에 함유되어 있는 핵분열생성물과 특정 동위원소를 정량하여 핵연료의 화학적 특성과 연소이력을 밝힐 수 있다. 따라서 미량 또는 극미량의 핵분열

생성물 화학분석 기술 개발은 사용후핵연료의 화학특성을 규명하는데 필수적인 연구분야이다. 원자력 기술 선진국에서는 사용후핵연료 처리와 방사성 폐기물처리 연구를 통하여 고준위 방사성 물질의 화학분석에 관한 연구가 폭넓게 이해되어 왔으며 현재는 신뢰도를 향

상시키는데 주력하고 있다.^{1,3} 한편 우리는 최근 사용후 핵연료를 정책적으로 관리하고 이용할 필요성이 있음을 인식하고 사용후핵연료 화학특성을 규명할 수 있는 연구가 본격적으로 수행되고 있다.

미량의 농도범위에서 여러 금속 원소들을 동시에 분석할 수 있어서 방사성 폐기물의 양과 분석자의 방사선 피폭시간을 줄일 수 있는 유도 결합 플라즈마 원자방출 분광법(ICP-AES)이 방사성 물질 분석에 적합한 것으로 평가되어 왔다.⁴ 그러나 핵분열생성물을 측정할 때 방출 스펙트럼이 매우 복잡한 우라늄과 플루토늄이 분광학적 간섭을 하는 것으로 알려져 있다.^{5,7} 따라서 사용후핵연료의 매트릭인 우라늄 및 플루토늄의 분리와 핵분열생성물의 정량적 회수가 필수적으로 요구되었으며 이를 위하여 이온교환수지법^{8,9}과 유기용매추출법¹⁰⁻¹² 등과 같은 분리법이 광범위하게 적용되어 왔다. 특히, 유기용매추출법의 선택적 분리특성과 이온 크로마토그래피의 다단계 분리특성을 함께 갖춘 추출 크로마토그래피는 폐액이 많이 발생하지 않고 분리과정이 단순하여 방사화학 분석 분야에서 적용성이 크다. 따라서 tri-n-butyl phosphate(TBP), di(2-ethylhexyl)phosphoric acid (HDEHP) 및 octyl(phenyl)-NN-disisobutyl carbamoyl-methylphosphine oxide(CMPO) 등을 추출제로 하고 실란화된 실리카겔, 테프론 분말 및 polystyrene divinylbenzene을 지지체로 하는 추출 크로마토그래피 시스템의 흡착특성에 관한 연구가 폭 넓게 수행되어 왔다.¹³

본 연구에서는 기존에 사용되어 오던 Amberlite XAD-2 및 그 다공성수지와 최근에 사용되고 있는 Amberlite XAD-16 다공성 수지의 TBP 침윤능을 상호 비교하고 TBP 침윤능이 가장 우수한 Amberlite XAD-16을 지지체로 선택한 후 35,000 MWd MtU 연소도의 사용후핵연료 용해용액과 유사한 모의 사용후핵연료 용해용액을 사용하여 우라늄으로부터 핵분열생성물의 분리와 회수를 위한 적용성을 평가하였다.

실 험

기기 및 장치. 방사성 물질 분석에 적합하도록 Thermo Jarrell Ash사의 유도 결합 플라즈마 원자방출 분광기(IRIS-HR)와 스테인레스 강 재질의 글로브 박스를 결합시킨 ICP-AES 차폐 시스템을 사용하였다.¹⁴

시약 및 용액. Aldrich사의 Amberlite XAD 다공성 수지(20-50 mesh)를 지지체로 사용하였으며 100-200

mesh가 되도록 한 후 방부제와 반응하지 않고 남아있을 단위체를 HCl, NaOH, 메탄올, 아세트 및 tetrahydrofuran으로 제거하고 진공상태에서 건조시켰다.¹⁵ Merck사의 tri-n-butyl phosphate를 비롯한 모든 시약은 분석 시약급으로 정제하지 않고 사용하였으며 이차 증류수는 탈염수를 Millipore사의 Milli-Q plus Ultra Pure Water System에 통과시켜 제조하였다.

모의 사용후핵연료 용해용액. ²³⁵U의 함량이 3.21%, 연소도가 35,000 MWd MtU 그리고 냉각기간이 10년 인 경우로 사용후핵연료와 화학조성이 유사한 모의 사용후핵연료 용해용액을 제조하였다. 핵분열생성물 원소의 농도가 Table 1과 같이 되도록 U₃O₈(NBL, CRM 129)의 질산용액에 Spex사의 ICP-AES 분석용 표준용액을 일정량 첨가하였다.

TBP/XAD-16 침윤수지 분리관 구성. 200-500 mg의 Amberlite XAD 다공성 수지와 5 mL의 TBP를 유리 비커에 넣고 -30 inch Hg를 유지하는 진공오븐에서 하루 방치시켜 동공 안으로 TBP가 충분히 침윤되도록 하였다. 유리솜으로 분리관의 용출부분을 막은 폴리에틸

Table 1. Chemical composition of an acidic solution simulated for dissolver solution of a spent PWR fuel

Component	Concentration, mg/l.
Ba	36.7
Cd	2.4
Ce	50.1
Cs	50.2
Eu	2.8
Gd	2.7
La	25.7
Mo	70.6
Nd	85.1
Pd	30.0
Pr	23.5
Rb	7.4
Rh	10.0
Ru	45.0
Se	3.0
Sm	18.1
Sr	16.1
Te	10.3
Y	9.5
Zr	76.1
U	190.047
Free acidity, M	6

Table 2. Wavelength and determination reliability at analytical concentration

Element	Wavelength, nm	Analytical concentration, mg L ⁻¹	RSD, %
Lu	379.478	0.01	3.1
Ce	418.660	0.1	5.6
Pr	417.939	0.01	3.7
Nd	401.225	0.1	5.5
	406.109	0.1	3.4
Sm	360.949	0.1	3.8
	446.734	0.1	4.0
Eu	381.967	0.01	1.2
	420.505	0.01	3.0
Gd	310.050	0.1	1.5
Y	324.228	0.1	1.3
	437.494	0.1	0.9
	485.487	0.1	0.8
Ba	223.527	0.01	2.4
	455.403	0.1	0.7
Cd	226.502	0.01	0.7
	228.802	0.1	0.8
Sr	216.598	0.1	0.8
	346.446	0.1	6.2
	407.771	0.01	1.9

렌 재질의 일회용 피펫(안자름: 7 mm, SAINT-AMAND, U.S.A.)에 흘려 넣고 TBP로 비커를 씻어 넣은 후 유리 봉으로 관을 가볍게 두드리 수지가 균일하게 충전되도록 하였다. 분리관에 시료용액을 넣을 때 수지가 흐트러지지 않도록 수지층의 윗부분을 유리침으로 막은 후 TBP로 미리 포화시킨 10 mL의 4 M HNO₃을 통과시켜 여분의 TBP를 제거하고 분리관을 안정화시켰다.

지지체의 TBP 침윤능 비교. TBP가 충분히 침윤된 500 mg의 Amberlite XAD 다공성 수지를 무게를 알고 있는 일회용 피펫에 넣고 TBP로 비커를 씻어 넣은 후 유리봉으로 관을 가볍게 두드리 수지가 균일하게 충전되도록 하였다. 무게를 측정 한 후 15 mL의 4 M HNO₃을 통과시켜 용출된 TBP의 무게를 측정하여 침윤된 TBP의 양을 계산하였다.

핵분열생물 원소와 우라늄의 용리거동 및 회수율 측정. 우라늄이 약 10 mg 함유되어 있는 모의 사용후핵연료 용해용액 1 mL를 TBP로 침윤된 200 mg의 Amberlite XAD-16 다공성 수지 분리관에 넣었다. 완전히 통과시킨 후 용리액으로 4 M HNO₃을 계속 통과시키면서 1 mL씩 분액채취한 다음 ICP-AES로 분석하여 용출된 핵분열생성물 원소의 양을 측정하였다. 분석과정에서 과량의 방사성 폐기물이 발생하지 않도록 하기 위하여 Table 2에서와 같이 5% 이하의 측정 정밀도로 분석결과를 얻을 수 있는 농도범위를 조사하여 최적의 사용후핵연료 채취량을 결정하였으며(10 mg의 우라늄이 함유되어 있는 사용후핵연료) 확립된 분리법을 적용하여 핵분열생성물 원소의 회수율을 결정하였다.

결과 및 고찰

지지체 선택. 추출 크로마토그래피에서는 분리관을 구성하는 지지체의 동공과 표면적의 크기, 표면의 친지질성(lipophilic property) 그리고 팽윤과 수축성이 금속 이온의 용리거동에 큰 영향을 미치기 때문에 다양한 무기 및 유기 지지체의 특성에 관해 많은 연구가 수행되어 왔다. 1985년 Louis 등¹⁶은 표면적과 동공의 크기가 각각 다른 Amberlite-2와 -4를 대상으로 하는 비교 실험에서 지지체에 침윤된 추출제의 양이 증가할수록 금속 이온의 분배계수(K_d)와 분리관의 분해능(R_f)이 증가한다고 발표한 바 있다. 따라서 본 연구에서는 근래에 개발되어 유기성분 분리에 자주 사용되고 있는 Amberlite-16이 Amberlite-2 및 -4보다 표면적이 커서 추출 크로마토그래피를 위한 지지체로서 적합하다고 판단하고 TBP에 대한 침윤능을 비교하여 그 결과를 Table 3에 나타내었다. 침윤된 TBP의 양은 지지체의 표면적이 증가함에 따라 증가하였으며 충전부피(bed volume)도 함께 증가하였다. 연구 대상의 지지체는 모두 다리결합도가 큰 다공성수지로서 젤 타입의 지지체와 달리 시료의 염 농도 차이에 따라 팽윤과 수축율이 크게 변하지 않기 때문에 분리관의 안정도를 유지할 수 있는 장점이

Table 3. Properties of Amberlite XAD macroporous resins and TBP impregnated resins

Amberlite XADs	Surface area, m ² g	Bed volume, mL	Impregnated TBP, mmole g
XAD-2	300	1.6	1.82
XAD-4	725	1.9	2.54
XAD-16	750	3.1	3.44

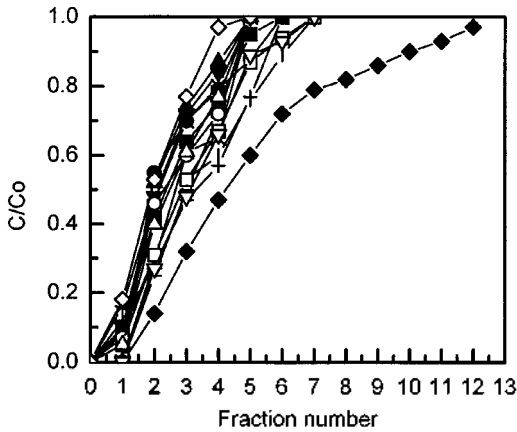


Fig. 1. Breakthrough curves of fission product elements. Fraction size: 0.5 mL. Column: weight of XAD-16: 500 mg. Loading sample solution: 1 mL. Bed volume: 3 mL. Flow rate: 0.07 mL/min. Curves: ■: Te, ▼: Cd, ◆: Y, ---: Pd, - - -: Gd, * : Rh, ---: Eu, ---: Ce, + : Nd, -○-: La, -□-: Ru, -△-: Sm, - : Ba.

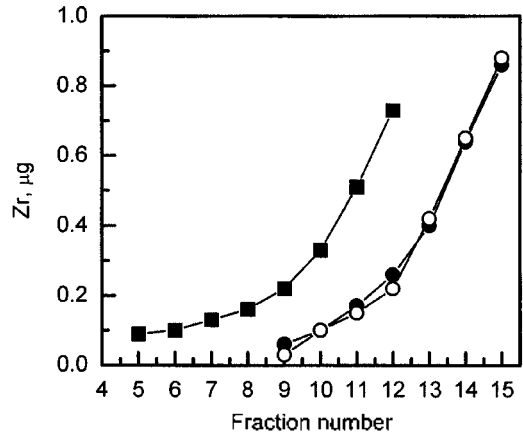


Fig. 2. Elution of Zr on TBP:XAD-16 resin column pre-equilibrated with different volumes of 6 M nitric acid. Eluent: 6 M nitric acid. Column: weight of XAD-16: 500 mg, bed height: 8 cm, bed volume: 3 mL. 2 mL. Curve: ●- 6 mL, ○- 15 mL, ■- 30 mL.

있었다.

Breakthrough 실험. 핵분열생성물 원소의 용리거동을 서로 비교하기 위하여 10 mg의 우라늄이 함유되어 있는 모의 사용후핵연료 용해용액을 500 mg의 Amberlite XAD-16을 TBP로 침윤시켜 만든 분리관에 0.07 mL/min의 흐름속도로 통과시키면서 0.5 mL씩 분액분취하고 용출된 핵분열생성물 원소의 양을 ICP-AES로 측정하였다. Fig. 1에 나타난 바와 같이 지르코늄과 우라늄을 제외한 대부분의 핵분열생성물 원소가 약 7 mL 이내에 모두 용출되었다. 이트륨은 머무름 시간이 비교적 길었으며 이러한 연구 결과들은 T. Ishimori가 질산 매질에서 측정된 TBP에 대한 금속이온의 분배계수 크기와 잘 일치하였다.¹⁷

TBP/XAD-16 침윤수지 분리관의 안정도. 추출 크로마토그래피가 유기용매추출과 이온교환수지법의 장점을 함께 갖고 있음에도 불구하고 분리화학 분야에서 다양하게 적용되지 못하는 이유는 분리관을 만들기 번거롭고, 이온교환수지와 달리 분리관이 불안정하다고 인식하기 때문이다. 그러나 본 연구에서와 같이 한번 사용한 분리관을 재사용하지 않고 방사성 폐기물로 처리해야 하는 경우에는 분리를 수행하는 동안 분리관의 안정도가 충분히 유지된다면 핵분열생성물 원소의 분리 회수에 충분히 적용할 수 있다고 판단한다. 따라서 TBP-XAD-16 침윤수지 분리관의 안정도를 조사하기 위

하여 6, 15 및 30 mL의 6 M HNO₃을 미리 통과시킨 3 개의 분리관을 대상으로 10 mg의 우라늄이 함유되어 있는 모의 사용후핵연료 용해용액 1 mL를 통과시킨 다음 6 M HNO₃을 통과시키면서 핵분열생성물 원소의 용리거동 변화를 조사하였다. 머무름 시간이 짧은 Cd, Ba, Sr, Mo 및 희토류 원소들의 용리거동은 거의 유사하였다. 그러나 Fig. 2에 나타난 바와 같이 머무름 시간이 비교적 긴 지르코늄의 경우에는 분리관의 안정도 변화가 뚜렷하게 나타나서 30 mL(총전부피의 10배)의 6 M HNO₃을 통과시킨 분리관에서는 다른 분리관에서 보다 지르코늄이 약 4 mL 일찍 용출됨으로써 6 M HNO₃을 30 mL 통과시키면 분리관의 안정도가 감소할 수 있다는 결론을 얻었다. 따라서 본 연구에서는 분리관 전처리액의 양을 10 mL로 결정하였다.

시료의 부피 변화. 핵분열생성물 원소의 용리거동에 미치는 시료 부피의 영향을 조사하였다. 이를 위하여 10 mg의 우라늄이 함유되어 있는 6 M HNO₃ 매질의 모의 사용후핵연료 용해용액의 부피를 0.5-5 mL 범위에서 조절하면서 500 mg의 Amberlite XAD-16을 TBP로 침윤시켜 만든 분리관에 넣고 6 M HNO₃을 흘려 넣으면서 1 mL씩 분액분취하여 용출액에 함유되어 있는 핵분열생성물 원소의 농도를 측정하였다. 우라늄과 지르코늄을 제외하고 머무름 시간이 가장 긴 이트륨의 용리거동을 대표적으로 Fig. 3에 나타내었다. Ba, Sr, Cd,

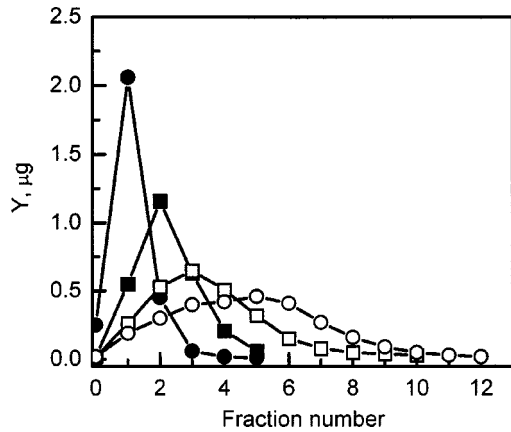


Fig. 3. Sample volume effect on elution of Y. Column: weight of XAD-16: 500 mg, bed height: 8 cm, bed volume: 3 mL. Eluent: 6 M nitric acid. Flow rate: 10-11 mL/min. Fraction size: 1 mL. Amount of Y(III) in each sample solution in microgram: 9.54. Loading volume (mL): —■—: 0.5, —●—: 1, —□—: 3, —○—: 5.

Mo 및 희토류 원소 등과 달리 머무름 시간이 긴 이드륨의 경우 시료의 부피가 증가할수록 꼬리잡기 현상이 두드러지게 나타나기 때문에 본 연구에서는 0.5 mL와 큰 차이가 없는 1 mL를 시료 부피로 결정하였다.

시료의 질산 농도 변화. 앞서서의 실험결과를 살펴보면 지르코늄의 머무름 시간이 너무 길기 때문에 방사성 시료를 분석하는 경우 분석자가 장시간 방사선에 노출될 위험성이 있다. 따라서 500 mg의 Amberlite XAD-16을 TBP로 침유시켜 만든 분리관에 질산의 농도를 3-6 M 범위로 조절한 모의 사용후핵연료 용해용액 1 mL(10 mg의 우라늄이 함유)를 흘려 넣고 시료와 같은 질산 농도의 용리액을 통과시키면서 핵분열생성물 원소의 용리거동을 비교하였다. TBP에 대한 분배계수가 큰지 않은 Ba, Sr, Cd, Mo 및 희토류 원소들의 용리거동은 질산 농도에 따라 큰 차이를 보이지 않았으며 대부분 10 mL 이내에 완전히 용출되었다. 그러나 지르코늄은 Fig. 4에서와 같이 질산 농도가 감소함에 따라 머무름 시간이 단축되어서 3 M HNO₃의 경우 10 mL 이내에 99%가 용출되었다. 그러나 사용후핵연료 용해용액에 함유되어 있는 Pu(IV)이 4 M HNO₃ 이상의 농도에서 안정하기 때문에³ 4 M HNO₃을 용리액으로 사용하였으며 이 때 지르코늄은 20 mL에서 약 99% 회수되었다.

분리관의 충전부피 변화. 지르코늄의 머무름 시간을

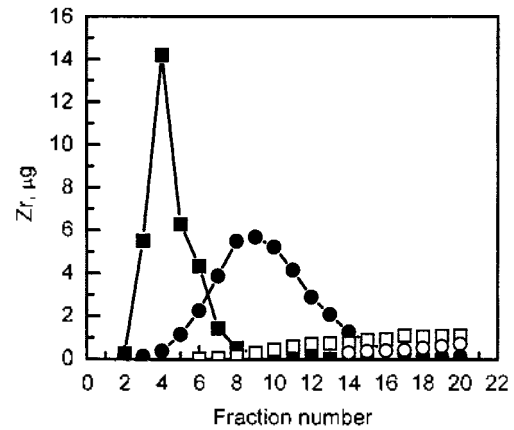


Fig. 4. Nitric acid concentration effect on elution of Zr. Fraction size: 1 mL. Column: weight of XAD-16: 500 mg, bed height: 8 cm, bed volume: 3 mL. Flow rate: 0.7 mL/min. Loading sample solution: 1 mL. Curves: —■— 3 M, —●— 4 M, —□— 5 M, —○— 6 M.

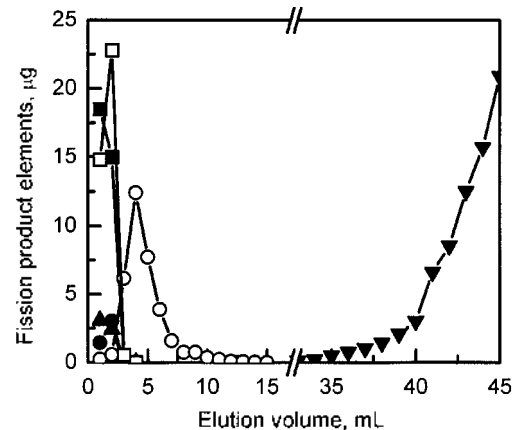


Fig. 5. Elution behaviour of fission product elements on the column packed with 200 mg of Amberlite XAD-16 impregnated with TBP. Flow rate: 0.1 mL/min. Eluent: 4 M Nitric acid. Curves: —■— Mo, —●— Y, —▲— Rh, —□— Zr, —○— Ce, —▼— U.

단축시키기 위하여 분리관의 충전부피를 조절할 필요가 있다. 이를 위하여 Amberlite XAD-16의 양을 100-500 mg 범위에서 조절하면서 앞서서와 같은 조건에서 핵분열생성물 원소의 용리거동을 비교 조사하였다. Fig. 5에서와 같이 대부분의 핵분열생성물 원소들은 5 mL 이내에서 그리고 지르코늄은 15 mL 이내에서 99% 이상 회수할 수 있었으며 우라늄이 35 mL 이후에서 용출되는 Amberlite XAD-16의 충전부피가 200 mg인 분리

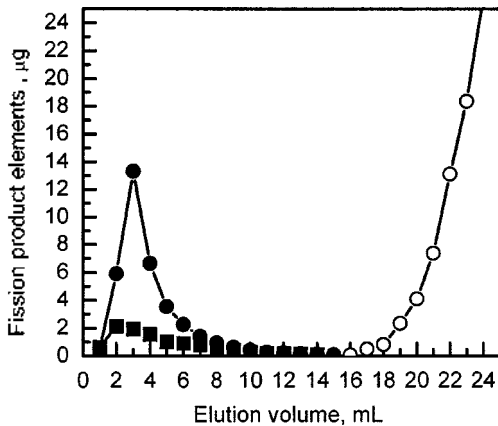


Fig. 6. Elution behaviour of fission product elements on the column packed with 150 mg of Amberlite XAD-16 impregnated with TBP. Flow rate: 0.1 ml/min. Eluent: 4 M HNO₃. Curves: —■— Pd, —●— Zr, —○— U.

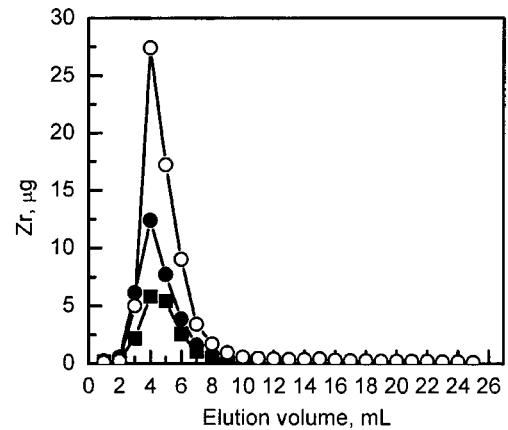


Fig. 7. Elution curves of Zr at different concentrations. Column: XAD-16; 200 mg. Eluent: 4 M HNO₃. Curves: —■— 16 µg/mL, —●— 38 µg/mL, —○— 76 µg/mL.

관 조건의 가장 우수하였다. 한편, Fig. 6에 나타낸 150 mg의 Amberlite XAD-16을 충전한 분리관의 경우에는 지르코늄의 용리거동에는 큰 변화를 보이지 않으나 16 mL부터 우라늄이 용출되기 시작하기 때문에 본 연구에 적합하지 않음을 알 수 있었다.

핵분열생성물 원소의 용리에 미치는 Zr과 U의 영향. 질산농도와 충전부피 변화에 따른 핵분열생성물 원소의 분리 특성을 연구한 결과 4 M HNO₃에서 그리고 200 mg의 Amberlite XAD-16을 지지체로 사용하는 분리관을 사용하면 15 mL 이내에 대부분의 핵분열생성물 원소들을 정량적으로 분리, 회수할 수 있었다. 따라서 설정된 분리조건에서 사용후핵연료의 매질인 우라늄과 머무름 시간이 비교적 긴 지르코늄의 양에 따른 공존 핵분열생성물 원소들의 용리거동 변화를 조사하였다. 이를 위하여 우라늄이 5, 10 및 20 mg 그리고 지르코늄이 16, 38 및 76 µg 함유되어 있는 모의 사용후핵연료 용해용액 1 mL를 200 mg의 Amberlite XAD-16을 TBP로 침윤시켜 만든 분리관에 넣고 4 M HNO₃을 흘러 넣으면서 1 mL씩 분액분취하여 용출액에 함유되어 있는 핵분열생성물 원소의 농도를 측정하였다. Fig. 7에 나타낸 바와 같이 지르코늄은 농도가 증가함에 따라 꼬리끼기 현상이 두드러지게 나타났으며 우라늄 농도의 증가에 따른 지르코늄의 밀어내기 효과는 크지 않았다.

핵분열생성물 원소의 분리/회수율. 음이온교환수지법으로 사용후핵연료에 함유되어 있는 플루토늄을 분리

한 후 회수한 용액에는 우라늄과 대부분의 핵분열생성물들이 함유되어 있다.¹⁸ 본 연구에서는 이 시료와 유사한 모의 산성 용액(우라늄: 10 mg/mL, 지르코늄: 40 µg/mL, 기타 핵분열생성물 원소: 20 µg/mL)을 대상으로 앞에서 확립한 분리, 회수법의 신뢰도를 확인하고자 하였다. 이를 위하여 1 mL의 모의 산성 용액을 증발건고시킨 후 2 mL의 7.86 M HNO₃으로 용해시킨 다음 플루토늄의 분리과정을 모사하여 플루토늄의 산화수 조절용 과산화수소수 0.13 mL를 넣었다. 4일간 방치한 후 다시 증발건고하고 1 mL의 4 M HNO₃으로 용해시켰다. 분리관에 넣은 후 1 mL의 4 M HNO₃으로 비커를 씻어 넣고 13 mL의 4 M HNO₃으로 용리시킨 후 증류수로 20 mL 되게 한 다음 회수된 핵분열생성물 원소의 양을 ICP-AES로 측정하였다. Table 4에 나타낸 바와 같이 6 M HNO₃으로 정량적으로 회수되던 Pd과 Ru를 제외한 대부분의 핵분열생성물 원소가 정량적으로 분리, 회수됨으로서 본 연구에서 확립한 핵분열생성물 분리, 회수법을 신뢰할 수 있다고 판단한다.

결론

사용후핵연료 용해용액에 미량 함유되어 있는 핵분열생성물을 유도 결합 플라즈마 원자방출분광법으로 정량하기 위하여 전처리 과정에서 필요한 핵분열생성물 분리, 회수기술을 확립하였다. 이를 위하여 모의 사용후핵연료 용해용액을 대상으로 매질인 우라늄으로부터

Table 4. Recovery of fission product elements by TBP/XAD-16/HNO₃ extraction chromatography

Fission product elements	Added, μg	Found, μg	Recovery, %	RSD, %
Mo	20	19.6	98.0	1.7
Sc	20	20.0	100.0	0.8
Te	20	19.4	97.0	0.3
Cd	20	19.8	99.0	1.2
Ba	20	20.4	102.0	2.2
Y	20	20.0	100.0	1.4
Pd	20	14.6	78.5	3.1
Gd	20	19.8	99.0	1.9
Sm	20	19.4	97.0	0.9
Rh	20	20.4	102.0	0.9
Ru	20	15.6	78.0	2.9
Zr	40	38.8	97.0	1.9
Eu	20	19.4	97.0	0.7
Nd	20	20.5	102.5	0.4
Ce	20	19.6	98.0	0.3
Sr	20	19.4	97.0	1.2
La	20	19.6	98.0	0.7

(n=3)

Cd, Ba, Sr, Sc, Te, Y, Gd, Sm, Eu, Nd, Ce, La, Rh, Ru, Pd, Zr, 및 Mo의 분리, 회수조건을 최적화하였다.

추출 크로마토그래피를 위해 지지체로 사용해 오던 Amberlite XAD-2 및 -4 다공성 수지보다 표면적이 큰 Amberlite XAD-16의 TBP 침윤능이 더 우수하여서 추출 크로마토그래피에 의한 핵분열생성물 원소의 분리 분야에서 지지체로 적용성이 클 것으로 판단한다.

유기용매추출법으로 측정된 TBP에 대한 핵분열생성물 원소 분배계수 크기와 추출 크로마토그래피로 조사된 핵분열생성물 원소의 흡착경향이 일치하는 결과를 얻었다.

TBP XAD-16 침윤수지 분리관은 6 M HNO₃을 용리액으로 사용할 경우 약 5 배의 충전 부피를 통과시켜도 안정한 것으로 나타났다.

시료 부피, 질산 농도, 분리관의 충전 부피 그리고 우라늄과 지르코늄의 농도를 변화시키면서 핵분열생성물 원소의 용리거동을 조사한 결과 TBP가 침윤된 200 mg의 Amberlite XAD-16이 충전된 분리관에 4 M HNO₃ 매질의 시료 1 mL를 넣고 시료와 같은 질산 농도의 용리액 14 mL를 통과시키면 Cd, Ba, Sr, Sc, Te, Y, Gd, Sm, Eu, Nd, Ce, La, Rh, Zr, 및 Mo을 우라늄으로부터 정량적으로 분리, 회수할 수 있었다.

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며 이에 감사드립니다.

인용 문헌

1. Ache, H. J. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **1988**, *124*, 415.
2. Edlson, M. C.; Dekalb, E. L. *Ames Laboratory Report* 1989, IS-M-61.
3. 1988 Annual Book of ASTM Standards, Vol. 12.01, *Nuclear Energy(1), American Society for Testing and Materials*; Philadelphia, PA, 1988; Method ASTM C 696.
4. Kato, K. *Atomic Spectroscopy* **1986**, *7*, 129.
5. Boumans, P. W. J. M. *Spectrochim. Acta* **1980**, *35B*, 57.
6. Michaud, E.; Memet, J. M. *Spectrochim. Acta* **1982**, *37B*, 145.
7. Brenner, I. B.; Frlieh, S.; Eldad, H. *ICP Information Newsletter* **1984**, *10*, 451.
8. Huff, E. A.; Bowers, D. L. *Appl. Spectrosc.* **1989**, *43*, 223.
9. Walton, H. F.; Rocklin, R. D. *Ion Exchange in Analytical Chemistry*; CRC Press, Boca Raton, FL, 1990.
10. Floyd, M. A.; Morrow, R. W. *Spectrochim. Acta* **1983**, *38B*, 303.
11. Sehagiri, T. J.; Babu, Y. *Talanta* **1984**, *31*, 773.
12. Ko, R. *Appl. Spectrosc.* **1984**, *38*, 909.
13. Braunt, T.; Ghersini, G. Ghersini, G., Eds.; *Extraction*

- Chromatography*: Elsevier, Amsterdam, 1975.
14. Lee, C. H.; Suh, M. Y.; Choi, K. C.; Park, Y. S.; Jee, K. Y.; Kim, W. H. *Analytical Science & Technology* **2000**, *13*, 474.
15. Lee, C. H.; Kim, J. S.; Suh, M. Y.; Lee, W. *Anal. Chim. Acta* **1997**, *339*, 303.
16. Louis, R.; Duyckaerts, E. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **1985**, *90*, 105.
17. Ishimori, T.; Watanabe, K. *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **1960**, *33*, 1443.
18. Suh, M. Y.; Sohn, S. C.; Lee, C. H. *et al.*, *J. Kor. Chem. Soc.* **2000**, *44*, 480.
-