

가압 경수로 사용후핵연료 중 삼중수소 분석

이창현* · 서무열 · 최광순 · 지광용 · 김원호
한국원자력연구소, 원자력화학연구부
(2004. 6. 10 접수, 2004. 9. 9 승인)

Determination of Tritium in Spent Pressurized Water Reactor (PWR) Fuels

Chang Heon Lee*, Moo Yul Suh, Kwang Soon Choi, Kwang Yong Jee and Won Ho Kim
Nuclear Chemistry Research Team, Korea Atomic Energy Research Institute,
P.O. Box 105, Yusong, Daejeon, Korea.
(Received Jun. 10, 2004, Accepted Sep. 9, 2004)

요 약 : 가압 경수로 사용후핵연료의 화학특성을 규명하기 위하여 극미량 함유되어 있는 삼중수소 (^3H)의 정량기술을 확립하였다. 분석과정에서 발생하는 방사성 폐액의 양을 줄이고 분석자의 방사선 피폭을 줄이기 위하여 하나의 시료로부터 ^{14}C 과 ^3H 를 순차적으로 회수할 수 있도록 분리조건을 최적화하였다. 사용후핵연료를 질산으로 용해하는 과정에서 $^{14}\text{CO}_2$ 와 함께 휘발하는 $^{129}\text{I}_2$ 는 AgNO_3 가 침윤되어 있는 흡착제로 제거하였다. $^{14}\text{CO}_2$ 는 1.5 M NaOH 에 포집시키고 $^3\text{H}_2\text{O}$ 는 증류시켜 회수하였다. ^3H 의 평균 회수율은 97.9%, 상대표준편차는 0.9% ($n = 3$) 이었으며 37,000 MWd/MtU 연소도의 사용후핵연료를 대상으로 ^3H 를 분석하고 표준물질첨가법으로 분석신뢰도를 평가하였다.

Abstract : To characterize chemically a spent pressurized water reactor (PWR) fuel, an analytical method for trace amounts of tritium (^3H) in it has been established. Considering the effective management of radioactive wastes generated through the whole experimental process and the radiological safety for analysts, a separation condition under which ^{14}C and ^3H can be sequentially recovered from a single fuel sample was optimized using simulated spent PWR fuel dissolved solutions. $^{14}\text{CO}_2$ evolved during dissolution of the spent PWR fuels with nitric acid was trapped in an aliquot of 1.5 M NaOH. $^{129}\text{I}_2$ which was volatilized along with $^{14}\text{CO}_2$ was removed using a silver nitrate-impregnated silica gel absorbent. ^3H remaining in the fuel dissolved solution as $^3\text{H}_2\text{O}$ was selectively recovered by distillation. Its recovery yield was 97.9% with a relative standard deviation of 0.9% ($n=3$). ^3H in a spent PWR fuel with burnup value of 37,000 MWd/MtU was analyzed, reliability of this analytical method being evaluated by standard addition method.

★ Corresponding author
Phone : +82+(0)42-868-8152 Fax : +82+(0)42-868-8148
E-mail : nchlee1@kaeri.re.kr

Key word : Tritium, Spent Pressurized Water Reactor (PWR) Fuels, Liquid scintillation counting

1. 서 론

삼중수소 (^3H 또는 T)는 고속 중성자 반응 ($^{14}\text{N} + n \rightarrow ^{12}\text{C} + ^3\text{H}$)을 통하여 성층권에서 자연적으로 생성된다. 핵무기 실험 및 핵연료 연소 과정에서 ternary fission 과 불순물로 함유되어 있는 ^6Li 및 ^{14}N 의 중성자 방사화에 의해 인공적으로 생성되기도 하며¹, 사용후핵연료 재처리를 위한 용해과정에서 방출될 수 있으므로² ^3H 의 회수와 정량에 관한 연구는 원자력 산업 관련 시설 주변의 환경관리 측면에서 매우 중요하다. 영국의 Sellafield에 있는 BNFL은 1995년 원자력발전 과정에서 2.7×10^{15} Bq (Becquerel)을 바다로 그리고 5.90×10^{14} Bq을 대기권으로 방출시켰다고 발표한 바 있다.³

사용후핵연료의 화학특성을 규명하고 연소거동을 정확하게 예측하기 위해서는 사용후핵연료에 미량 함유되어 있는 ^3H 및 공존 핵분열생성물을 정량적으로 분석해야 한다. 일본 원자력연구소 (JAERI)에서 수행된 사용후핵연료 화학특성 연구결과에 의하면 ^3H 생성량은 핵연료 연소도가 증가함에 따라 증가하며, 지르칼로이 피복관과 사용후핵연료 용해용액 내 ^3H 분배비는 15,300~38,700 MWd/ MiU 연소도 범위에서 대략 0.81~1.33이다.⁴

^3H 는 낮은 베타 에너지 ($E_{\text{max}} = 18.6 \text{ keV}$) 방출체이기 때문에 액체섬광계수법으로 정량할 때 분석에 영향을 미칠 수 있는 방사성 핵종을 측정 전에 반드시 제거해야 한다. 일반적으로 물, 토양 등과 같은 환경시료에 함유되어 있는 ^3H 분석법은 많이 보고되고 있으나⁵, 대부분은 사용후핵연료 및 피복관 내 ^3H 분포 및 거동에 관한 연구⁴ 또는 사용후핵연료의 voloxidation 및 질산 용해과정에서 ^3H 의 거동에 관한 연구로서⁶ 실제 사용후핵연료 내 ^3H 의 분석방법에 대해서는 자세하게 기술하고 있지 않다.

지르칼로이 또는 이와 유사한 고체물질에 미량 함유되어 있는 ^3H 는 전기 전극로의 탄소관에서 시편을 녹일 때 방출되는 ^3H 를 운반기체 (보통 6% 수소/헬륨)와 함께 500~600 °C를 유지하는 Cu판에 통과시켜 $^3\text{H}_2\text{O}$ 로 산화시킨 후 약 6 °C의 냉각수에 포집시켜 회수할 수 있다.⁷ 이 방법은 ^3H 회수과정을 자동으로 통제할 수 있고 신속한 장점이 있으나 전극로를 Hot Cell 또는

장갑상자 안에 설치해야 하고 고가의 장비를 사용해야 하는 어려움이 있다.

공기 또는 산소 분위기에서 사용후핵연료를 490~500 °C에서 가열시켜 U_3O_8 으로 산화시키는 voloxidation 공정에서 대부분 (99.8%)의 ^3H 는 $^3\text{H}_2\text{O}$ 로 방출되며 남아있는 ^3H 는 질산 용해과정에서 $^3\text{H}_2\text{O}$ 로 산화되어 용액에 남아있음이 확인되었다.^{7,8} 한편, JAERI가 발표한 연구결과에 의하면 사용후핵연료에 함유되어 있는 ^3H 의 약 1%가 질산 용해과정에서 HT로서 방출되며 대부분은 $^3\text{H}_2\text{O}$ 로 용해용액에 안정하게 남아있다.⁴ 따라서 고가의 분석장비를 사용하여 핵연료 시편으로부터 직접 ^3H 를 회수하는 것보다 사용후핵연료 용해용액으로부터 ^3H 를 회수하는 것이 더 경제적인을 알 수 있다. 그러나 사용후핵연료 용해용액에는 액체섬광계수법으로 ^3H 를 정량할 때 간섭할 수 있는 악티늄족 원소들과 핵분열생성물들이 함유되어 있다. 따라서 측정하기 전에 반드시 ^3H 을 정량적으로 분리, 회수해야 하며, 분리방법으로는 혼합 이온교환수지법과⁹ 증류법¹⁰이 알려져 있다.

본 연구에서는 35,000 MWd/MiU 연소도의 가압 경수로 사용후핵연료를 기준 시료로 정하고 이와 화학조성이 유사하도록 제조한 모의 사용후핵연료 용해용액을 사용하여 ^3H 정량에 필요한 선택적 회수조건을 최적화한 후 액체섬광계수법으로 정량할 수 있는 분석방법을 확립하고자 하였다. 사용후핵연료 용해용액으로부터 $^3\text{H}_2\text{O}$ 를 증류법으로 회수할 때 질산 매질에서 휘발할 수 있는 Tc_2O_7 와 RuO_4 외에도 다수의 핵종이 함께 회수될 수 있음을 고려하여 알칼리 매질에서 $^3\text{H}_2\text{O}$ 만 선택적으로 회수할 수 있는 방법에 관하여 조사하였다. 또한 최적화된 분리조건에서 37,000 MWd/MiU 연소도의 사용후핵연료에 함유되어 있는 ^3H 를 정량하고 Origen2 전산코드로 계산한 결과와 비교하였으며 표준 물질첨가법으로 확립된 분석방법의 신뢰도를 평가하였다.

2. 실험

2.1. 시약, $^3\text{H}_2\text{O}$ 증류기 및 측정기기

Amersham Lab사의 $^3\text{H}_2\text{O}$ 표준용액 ($^3\text{H}_2\text{O}$: 2003년 9월 1일: 636.7 Bq/mL)과 $\text{Na}_2^{14}\text{CO}_3$ 표준용액 ($\text{Na}_2^{14}\text{CO}_3$:

238.1 Bq/mL)을 증류수로 희석하여 사용하였다. 섬광계로는 Packard사의 Ultima Gold AB를 사용하였으며 실험에 사용된 모든 시약은 분석 시약급으로서 정제하지 않고 사용하였다. 이차 증류수는 탈염수를 Milli-Q plus Ultra Pure Water System (Millipore)에 통과시킨 것을 사용하였다. $^3\text{H}_2\text{O}$ 는 자체 제작한 유리재질의 증류기를 사용하여 회수하였다. 감마 핵종에 의한 간섭을 확인하기 위하여 EG & G ORTEC사의 ADCAM 100 series 감마 분광 분석기를 그리고 ^3H 를 정량하기 위하여 Packard (Tri-Carb 2500, U.S.A.)사의 액체섬광계수기를 사용하였다.

2.2. 모의 사용후핵연료 용해용액 및 사용후핵연료 용해용액 준비

10년 냉각시킨 35,000 MWd/MtU 연소도의 사용후핵연료 용해용액과 화학조성이 유사한 비방사성 모의용액을 제조하기 위하여 유도결합 플라즈마 원자방출분광분석용 표준용액 (1,000 mg/L)과 U_3O_8 (NBL Certified Reference Material 129)의 질산 용해용액을 Table 1과 같은 농도가 되도록 혼합하여 제조하였다. 이 혼합 금속이온 용액 100 mL에는 $^{14}\text{CO}_2$ 를 회수하기 위하여 사용한 CaCO_3 가 5 g 첨가되어 있으며 $^3\text{H}_2\text{O}$ 와 $\text{Na}_2^{14}\text{CO}_3$ 표준용액은 회수실험 전에 적당량 첨가하였다.

2년 냉각시킨 37,000 MWd/MtU 연소도의 사용후핵연료 0.849 g과 사용후핵연료 용해과정에서 방출되는 $^{14}\text{CO}_2$ 를 정량적으로 알칼리 용액에 포집시키기 위하여 헬륨과 같은 운반기체를 사용하는 대신에 질산과 반응하여 운반기체로 CO_2 를 방출할 수 있는 CaCO_3 2.5 g을 납 차폐 Hot Cell 안에 설치되어 있는 사용후핵연료 용해 및 $^{14}\text{CO}_2$ 회수장치의 등근바닥 플라스크에 넣었다. $^{14}\text{CO}_2$ 회수과정에서 함께 방출되는 불활성의 ^{85}Kr 은 화학반응 없이 방출되지만 ^{14}C 및 ^3H 정량에 영향을 미치는 ^{129}I 는 AgNO_3 를 침윤시킨 실리카 겔에 흡착시켜 제거하였다.

사용후핵연료 용해 직전에 8 M HNO_3 을 넣고 12 시간동안 가열시켜 $^{14}\text{CO}_2$ 를 회수한 후 $^3\text{H}_2\text{O}$ 를 회수하기 위하여 일정량의 용해용액을 폴리에틸렌 용기에 넣어 $^3\text{H}_2\text{O}$ 증류기가 설치되어 있는 fume hood로 옮겼다. 사용후핵연료 용해용액 0.1 mL (약 60 mR/h)를 채취하여 25 mL 용량 플라스크로 옮긴 다음 8 M 질산으로 25 mL 되게 하여 ^3H 를 회수하기 위한 최종 시료용액으로 사용하였다.

Table 1. Chemical composition of a simulated spent PWR fuel dissolved solution

Element	Spent fuel, $\mu\text{g/g}$	SIM soln., $\mu\text{g}/100 \text{ mL}$
*HT	1,242.8 kBq	665.6 Bq
Ba	1,835	3,670
Cd	119.8	240
Ce	2,505	5,000
Cs	2,511	5,000
Eu	141.6	300
Gd	136.9	300
La	1,284	2,700
Mo	3,528	7,200
Nd	4,257	8,500
Pd	1,505	3,000
Pr	1,177	2,400
Rb	368.8	800
Rh	486.0	1,000
Ru	2,330	4,500
Sb	100	100
Sn	200	200
Se	59.3	120
Sm	906.9	1,810
Sr	806.6	1,610
*Tc	809.2	63 Bq
Te	515.5	1,030
Y	476.7	1,000
Zr	3,805	7,610
U	0.9539 g	2.002 g
*Ag	82.4	0.824
*I	249.3	2.5
CaCO_3	2.5 g	5.0 g

* Element added to a round bottom flask containing 0.5 mL of the simulated spent fuel dissolved solution prior to tritium recovery experiment

2.3. 증류법에 의한 $^3\text{H}_2\text{O}$ 회수 및 간섭핵종 제거

증류수 4.0 mL를 $^3\text{H}_2\text{O}$ 회수용 증류기의 등근 바닥 플라스크에 넣고 NaOH 펠렛 (약 1 g)과 비등석을 넣었다. $^3\text{H}_2\text{O}$ 를 모으기 위하여 20 mL 용량의 플라스크를 $^3\text{H}_2\text{O}$ 수집기의 용출구 아래에 설치하였다. 냉각 콘덴서 위에 증류수를 1 mL 넣어 $^3\text{H}_2\text{O}$ 수집기의 용출구를 증류수로 채운 후 최종 시료용액을 1.0 mL 넣고 가열하였다. 냉각수 온도가 약 14 $^{\circ}\text{C}$ 를 유지하도록 하였으며 $^3\text{H}_2\text{O}$ 회수가 완결되어 수집기의 용출구 끝에 물방울이 모이지 않으면 실온까지 냉각시킨 다음 증류수 5 mL를 등근 바닥 플라스크에 넣은 후 증류를 한 번 더 실시하였다. 마지막으로 증류수로 냉각 콘덴서를 씻어 수집 플

라스크로 모은 다음 증류수로 20 mL 되게 하였다. ^3H 를 정량하기 위하여 폴리에틸렌 재질의 액체섬광계수용 용기에 섬광제 15 mL와 회수용액을 1 mL 씩 넣고 잘 섞은 다음 2~18.6 keV 범위에서 30 분간 계측하였다

사용후핵연료에 공존하는 핵종들에 의한 간섭 여부를 확인하기 위하여 $^3\text{H}_2\text{O}$ 표준용액을 첨가하지 않은 모의 사용후핵연료 용해용액을 대상으로 $^3\text{H}_2\text{O}$ 회수방법에 따라 증류한 후 유도 결합 플라즈마 질량분석기(ICP-MS)로 공존 원소들에 의한 오염 가능성을 조사하였다. 비교를 위하여 모의 사용후핵연료 용해용액 대신 증류수를 대상으로 동일한 방법으로 증류하고 오염도를 조사하였다.

2.4. 표준물첨가법에 의한 분석신뢰도 평가

5 개의 액체섬광계수용 용기에 섬광제 15 mL와 회수용액을 1 mL씩 넣고 0.0~300 Bq 범위의 $^3\text{H}_2\text{O}$ 표준용액을 첨가한 다음 2~18.6 keV 범위에서 30 분간 각각 계측하였다. 이와 별도로 최종 시료용액 1 mL와 0.0~300 Bq 범위의 $^3\text{H}_2\text{O}$ 표준용액을 증류장치에 넣고 증류한 후 회수용액에 함유되어 있는 ^3H 의 양을 액체섬광계수법으로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 간섭 핵종 제거

사용후핵연료에 함유되어 있는 ^{14}C 과 ^3H 는 각각 ^{14}CO 와 HT로 존재한다.^{4,11} 사용후핵연료를 질산으로 용해시킬 때 ^{14}CO 는 공기 중의 산소와 반응하여 대부분 $^{14}\text{CO}_2$ 로¹²⁻¹⁴ 방출되고 ^3H 는 $^3\text{H}_2\text{O}$ 로 산화되어 용해용액 내에 안정하게 남아 있는 것으로 알려져 있다.⁴ 따라서 본 연구에서는 사용후핵연료 용해 과정에서 방출되는 $^{14}\text{CO}_2$ 를 먼저 회수한 후 용해용액에 남아 있는 $^3\text{H}_2\text{O}$ 를 증류법으로 회수하는 분리과정을 설정하여 하나의 사용후핵연료 시편으로부터 $^{14}\text{CO}_2$ 와 $^3\text{H}_2\text{O}$ 를 순차적으로 회수, 정량하도록 함으로써 방사성 폐액의 방출을 억제하고 분석자의 방사선 피폭을 줄이도록 하였다.

$^3\text{H}_2\text{O}$ 표준용액을 첨가하지 않은 모의 사용후핵연료 용해용액을 대상으로 “2.3. 증류법에 의한 $^3\text{H}_2\text{O}$ 회수” 절차에 따라 회수용액을 얻은 후 유도 결합 플라즈마 질량분석기로 공존 원소들에 의한 오염 여부를 조사하여 Table 2에 나타내었다. 비교를 위하여 모의 사용후핵연료 용해용액 대신 증류수를 대상으로 동일한 방법

으로 오염도를 조사하고 “Blank”로 그 결과를 나타내었다. 전체적으로 “Test”의 결과가 “Blank”의 결과보다 작은 것으로 미루어 볼 때 사용후핵연료의 핵분열생성물들에 의한 간섭은 발생하지 않을 것으로 판단된다. 모의 사용후핵연료 용액에 주성분으로 첨가되어 있는 우라늄이 극미량 검출되었으나 실제 ^3H 와 함께 증류된 것인지 또는 외부로부터의 오염에 의한 것인지 확인되지 않았다. 또한 모의 사용후핵연료 용해용액에 ^{99}Tc (63 Bq)을 첨가한 후 증류시킨 결과 회수용액에서 ^{99}Tc 을 전혀 발견할 수 없었다.

Table 2. Analytical result of the recovered distillate by ICP-MS

Metal element	Blank, ng/mL	Test, ng/mL
Ba	12.2	3.7
Cd	-	-
Ce	0.1	-
Cs	0.3	0.1
Eu	4.1	-
Gd	-	-
La	1.3	-
Mo	0.9	-
Nd	0.1	-
Pd	-	-
Pr	-	-
Rb	12.9	0.1
Rh	-	-
Ru	-	-
Se	-	-
Sm	-	-
Sr	0.4	-
Te	1.1	-
Y	0.8	-
Zr	0.5	-
Sb	0.1	-
Sn	0.1	-
U	0.1	2.3

3.2. ^3H 회수거동 조사

$^3\text{H}_2\text{O}$ 는 $^{14}\text{CO}_2$ 를 1.5 M NaOH에 포집시켜 회수한 후 증류법으로 회수하였다. 질산 매질의 사용후핵연료 용해용액을 90 °C 이상에서 가열시킬 때 Tc 및 Ru 핵종들이 Tc_2O_7 및 RuO_4 와 같은 휘발성 산화물로 함께 회수되는 것을 방지하기 위하여 NaOH를 넣어 악티늄족

원소와 핵분열생성물 원소들을 함께 침전시켰다. $^3\text{H}_2\text{O}$ 를 완전히 회수하기 위하여 과도하게 열을 가하여 침전물이 증발, 건조될 경우 금속염에 의한 오염이 발생할 수 있으므로 용해용액을 완전히 증발, 건조시키는 대신, 수차례 증류수를 첨가하여 반복 증류시킴으로써 정량적인 회수가 가능하도록 하였다. Fig. 1에 나타난 바와 같이 초기 증류에서도 95% 이상의 $^3\text{H}_2\text{O}$ 가 회수되었으므로 본 연구에서는 2 회 증류하여 회수하도록 하였다.

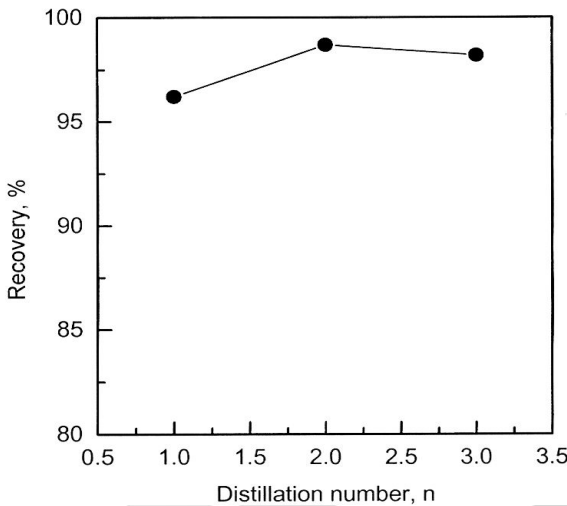


Fig. 1. Recovery behaviour of ^3H from a simulated spent PWR fuel dissolved solution $^3\text{H}_2\text{O}$:665 Bq.

$^3\text{H}_2\text{O}$ 표준용액 1 mL (665 Bq)를 첨가한 모의 사용후핵연료 용해용액 3 개를 사용하여 앞에서 확립한 회수절차에 따라 $^3\text{H}_2\text{O}$ 를 회수하고 ^3H 의 양을 액체섬광계수법으로 측정하여 회수율을 결정하였다. Table 3에 나타난 바와 같이 평균 회수율은 97.9% 그리고 상대표준편차는 0.9%로서 $^3\text{H}_2\text{O}$ 의 정량적인 회수가 가능하다고 판단된다.

Table 3. Recovery of ^3H from simulated spent PWR fuel dissolved solutions by distillation

Test No.	Added, Bq	Found, Bq	Recovery, %	Average, %	RSD, %
H-1	665	650.5	97.8		
H-2	665	657.6	98.8	97.9	0.9
H-3	665	643.0	97.1		

3.3. 사용후핵연료 중 ^3H 정량 및 분석신뢰도 평가

JAERI의 연구결과에 의하면 핵연료 조사과정에서 생성된 ^3H 의 총량은 연소도에 따라 선형적으로 증가한다. 그러나 원자력 발전 과정에서 생성된 ^3H 가 사용후핵연료 매질로부터 지르칼로이 피복관으로 이동하고 그 정도는 핵연료 연소 조건에 따라 다르게 나타남에 따라 사용후핵연료와 피복관 간의 ^3H 분배비는 연소도에 따라 선형적 관계를 갖지 않는다. 이와 같은 이유 때문에 연소도에 따라 각각 다른 ^3H 의 양을 정량화 할 수 없기 때문에 본 연구에서는 표준물첨가법을 적용하여 사용후핵연료에 함유되어 있는 ^3H 의 분석결과에 대한 신뢰도를 평가하고자 하였다.

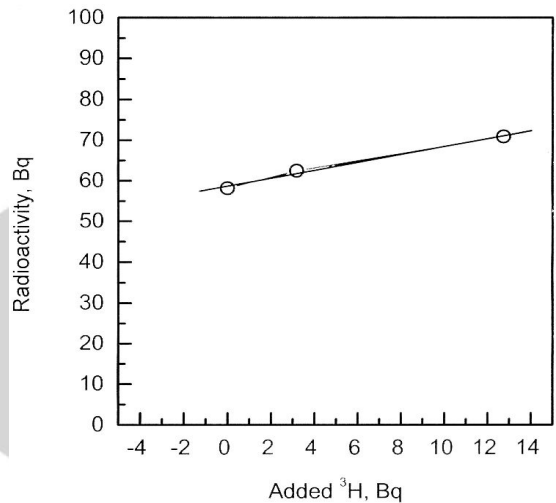


Fig. 2. Standard addition curve of tritium (Standard addition before distillation). $R=0.9952$, Standard deviation=0.9002, $Y=58.6496+0.9715X$.

37,000 MWd/MtU 연소도의 사용후핵연료를 대상으로 $^3\text{H}_2\text{O}$ 를 회수하고 액체섬광계수법으로 정량하였다. 사용후핵연료 1 g에는 12,892 KBq (RSD: 1.4%, $n=3$)의 ^3H 이 함유되어 있었으며 이 결과는 Origen 2 전산코드로 계산한 결과 [19,684 KBq $^3\text{H/g SF}$]의 65.5%에 해당된다. 본 연구에서는 지르칼로이 피복관에 함유되어 있는 ^3H 를 정량하지 않았으나 JAERI에서 발표한 연구결과에서와 같이 나머지 ^3H 의 대부분이 지르칼로이 피복관으로 이동하였을 것으로 판단한다.

증류하기 전과 후에 ^3H 표준물을 첨가하여 $^3\text{H}_2\text{O}$ 가 정량적으로 회수되는지 또는 공존하는 핵종들에 의한

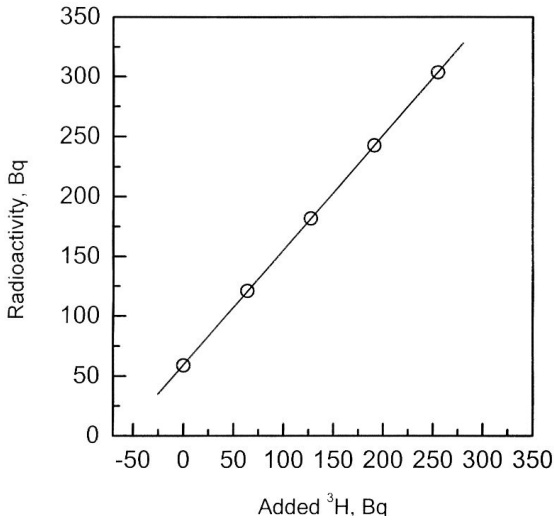


Fig. 3. Standard addition curve of tritium (Standard addition after distillation). $R=0.9999$, Standard deviation=0.4179, $Y=59.2400+0.9595X$.

간섭이 있는지 확인하였다. Fig. 2 및 3에 $^{14}\text{CO}_2$ 를 회수한 후 남아 있는 사용후핵연료 용해용액과 $^3\text{H}_2\text{O}$ 증류 과정에서 얻은 회수액에 $^3\text{H}_2\text{O}$ 표준액을 각각 첨가하여 얻은 표준물 첨가곡선을 그리고 이 때 얻은 분석결과를 Table 4에 나타내었다. 증류 전 및 후에 표준물을 첨가하여 얻은 분석결과를 기준으로 하여 표준물을 첨가하지 않고 얻은 분석결과와 비교해 본 결과 각각 -3.8% 및 -4.7%의 편차를 보이고 있어서 사용후핵연료 용해용액에 함유되어 있는 ^3H 를 증류법만으로도 정량적으로 회수, 분석할 수 있음을 알 수 있었다

Table 4. Analytical results obtained by standard addition method

Experiment	Standard addition	Result, kBq/g Spent Fuel	Deviation, %
1	No addition	12,738	-3.8
	Before distillation	13,242	
2	No addition	12,892	-4.7
	After distillation	13,527	

4. 결 론

사용후핵연료 용해용액에 함유되어 있는 ^3H 을 정량하고 표준물첨가법으로 분석신뢰도를 평가하였다. 회수

용액에서 사용후핵연료에 함유되어 있는 일부 핵종이 검출되었으나 실제 ^3H 의 정량에는 영향을 미치지 않았다. 지르칼로이 피복관에 함유되어 있는 ^3H 을 정량하지 않았으나 JAERI의 연구결과에서와 같이 ^3H 생성량의 일부가 지르칼로이 피복관으로 이동되었다고 판단한다. 사용후핵연료에 함유되어 있는 ^3H 의 분석결과에 대한 신뢰도를 평가하기 위하여 표준물첨가법을 적용한 결과 표준물첨가에 의한 결과를 기준으로 -4.7~3.8% 범위의 편차를 보이고 있으므로 사용후핵연료 용해용액에 함유되어 있는 ^3H 을 증류법으로 회수한 후 액체섬광계수법에 의한 정량이 가능함을 알 수 있었다.

감사의 글

이 연구는 과학기술부에서 지원하는 원자력 연구 및 개발 프로그램의 일환으로 수행되었습니다.

참고 문헌

- G. F. Knoll, "Radiation, Determination and Measurement", Wiley, Inc, New York, 1979.
- UNSCEAR, "Sources and Effects of Ionizing Radiation", United Nations Publications, Vienna, Austria, 1977.
- BNFL "Annual report on radioactive discharges and monitoring of the environment", Vol. 1, British Nuclear Fuels, Risely, Cheshire, UK, 1995.
- "Dissolution studies of spent nuclear fuels", JAERI-M 91-010, 1991.
- M. A. Gautier, E. S. Gladney and D. R. Perrin, "Quality assurance for Health and Environmental Chemistry: 1989", Los Alamos National Laboratory Report LA-11995-MS, 1990.
- J. A. Stone and D. R. Johnson, DP-MS-78-7, 1978.
- PNL-ALO-479 Technical Report, 1989.
- D. R. Johnson and J. A. Stone, DP-MS-77-77, 1978.
- E. W. Baumann and K. W. MacMurdo, CONF 771031-1, 1977.
- P. E. Warwick, I. W. Croudace, A. G. Howard, *Anal. Chim. Acta*, **382**, 225(1999).

11. G. L. Haag, J. W. Nehis, Jr. and G. C. Young, "Carbon-14 immobilization via the $\text{Ba}(\text{OH})_2 \cdot 8 \text{H}_2\text{O}$ process", In Proc. 17th DOE Nuclear Air Cleaning Conference, CONF-828033, U.S. DOE., pp 431-453, 1983.
12. W. Davis, Jr., "Carbon-14 Production in nuclear reactors", ORNL/NUREG/TM-12, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, 1977.
13. M. J. Kabat, "Monitoring and removal of gaseous carbon-14 species", In Proc. 15th DOE Nuclear air Cleaning Conference, CONF-780819, National Technical Information Service, Springfield, 1979.
14. C. O. Kunz, "14C release at light water reactors", In Proc. 17th DOE Nuclear air Cleaning Conference, CONF-820833, National Technical Information Service, Springfield, VA, pp 414-430, 1983.

