

유도결합플라스마 원자방출분광법을 이용한 $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ 핵연료 중 가돌리늄 분석

최광순* · 서무열 · 이창현 · 한선호 · 지광용

한국원자력연구원 원자력화학연구센터
(2007. 3. 29. 접수, 2007. 4. 10. 승인)

Direct determination of gadolinium in urania-gadolinia nuclear fuels by inductively coupled plasma atomic emission spectrometry

Kwang-Soon Choi*, Moo-Yul Suh, Chang-Heon Lee, Sun-Ho Han and Kwang-Yong Jee

Nuclear Chemistry Research Center, Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon 305-353, Korea

(Received March 29, 2007; Accepted April 10, 2007)

요 약: 이산화우라늄-이산화가돌리늄 핵연료를 질산으로 녹인 다음 우라늄 매트릭스로부터 가돌리늄을 분리하지 않고 유도결합플라스마 원자방출분광기(ICP-AES)로 바로 정량할 수 있는 분석조건을 검토하였다. 가돌리늄 분석에 미치는 우라늄의 분광학적 간섭 정도를 가돌리늄 스펙트럼으로부터 비교, 평가한 결과 336.223 nm의 파장이 분석선으로서 가장 적합하였다. 우라늄 매트릭스로부터 가돌리늄을 음이온 교환수지(Bio-Rad AG 1x8)로 분리한 다음 ICP-AES로 측정 한 값과 바로 측정 한 값을 견주어 본 결과, 상대편차는 5 % 범위 내에서 잘 일치하였다. 따라서 본 방법으로 핵연료($\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$)에 함유되어 있는 5~10 wt.%의 가돌리늄을 분리 과정없이 바로 ICP-AES로 정량할 수 있었다.

Abstract: The urania-gadolinia fuels were dissolved with nitric acid. The analytical conditions of ICP-AES for the direct determinations of gadolinium in the uranium matrices without separation process were investigated. Based on the effect of uranium on gadolinium intensity, the best wavelength for gadolinium was 336.223 nm. The relative deviation of two methods, direct and indirect measurements with anion exchange chromatography, was less than 5 %. Therefore it was possible for this procedure directly to measure 5~10 wt.% of gadolinium in urania-gadolinia fuels without separation by ICP-AES.

Key words: urania-gadolinia fuel, direct determination, gadolinium, ICP-AES

1. 서 론

핵연료의 연소도를 높게 유지하면 연료 교체 주기를 증가시킬 수 있어 원자력발전의 생산비용을 줄일

수 있다. 연소도를 높이기 위하여 반응초기의 연료 집합체 중의 연료는 잉여반응도 (excess reactivity)를 가져야 한다. 그러나 이 잉여반응도는 안전을 위하여 잘 제어하여야 하며 이를 위하여 가연성 독 물질

★ Corresponding author

Phone : +82-(0)42-868-8149 Fax : +82-(0)42-868-8148

E-mail: nkschoi@kaeri.re.kr

(burnable poisons), 즉 중성자를 흡수하여 반응도를 낮추는 물질을 반드시 사용해야 한다. 잉여반응도를 제어하기 위하여 2가지 방법을 같이 사용한다. 즉 원자력 발전 초창기부터 현재까지 사용하는 방법으로 원자로 1차 냉각수에 붕산(H_3BO_3)을 첨가하여 원자로를 운전하는 것과 병행하여 ZrB_2 가 코팅된 UO_2 연료를 사용하거나 Gd_2O_3 가 혼합된 $UO_2-Gd_2O_3$ 연료를 UO_2 핵연료 다발에 소량으로 쓴다¹. 독 물질 원소로는 중성자 흡수 단면적이 큰 붕소와 가돌리늄이 주로 쓰여왔다. 특히 가돌리늄(Gd)은 ^{155}Gd 와 ^{157}Gd 의 흡수 단면적이 각각 61,000 barn와 255,000 barn($10^{-24} cm^2$)으로 크고 변환 후의 ^{156}Gd 와 ^{158}Gd 의 중성자 흡수 단면적이 각각 2 barn와 2.4 barn으로 낮으며, 또한 자연에 존재하는 위의 동위원소의 존재비도 각각 14.8%와 15.7%이므로 많이 사용되고 있다². 현재 핵연료에 첨가되는 Gd_2O_3 의 양은 10 wt% 이내이다.

ICP-AES는 다원소 동시분석, 낮은 검출한계, 넓은 범위의 검정선의 직선성 및 낮은 매트릭스 간섭과 같은 장점으로 암석, 합금 및 지하수 등의 금속 및 비금속 원소 정량에 많이 쓰이고 있다. 그러나 이와 같은 ICP-AES의 많은 장점에도 불구하고 주성분에 의한 분광학적 간섭으로 인하여 미량으로 존재하는 원소를 정량하기 위해서는 매트릭스로부터 분석하고자 하는 원소를 미리 분리할 필요가 있다. 특히 우라늄같이 원자방출 스펙트럼이 복잡한 매트릭스 중에 미량으로 존재하는 원소를 정확하고 정밀하게 분석하고자 할 경우에는 용매추출법^{3,5}, 이온교환법⁶, 추출 크로마토그래피⁷ 및 침전법⁸ 같은 분리방법으로 우라늄을 분리해야 한다. 본 논문의 공동연구자는 가압 경수로 사용후핵연료 중의 핵분열생성물 원소(Cd, Ba, Sr, Y, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu 및 Gd)들의 분석방법을 이미 확립하였다⁹. 즉 먼저 음이온교환법으로 플루토늄을 분리하고 2단계로 tri-n-butyl phosphate(TBP)를 추출제로 한 추출 크로마토그래피로 우라늄으로부터 핵분열생성물 원소를 분리한 후, 3단계로 Am으로부터 위의 원소들을 di(2-ethylhexyl) phosphoric acid(HDEHP)를 추출제로 한 추출 크로마토그래피로 균분리한 다음 플라즈마와 시료도입부분이 차폐시스템 안에 설치된 ICP-AES로 측정하였다. Pan과 공동연구자들은 U_3O_8 에 0.3~1.2 $\mu g/g$ 함유되어 있는 Gd, Dy, Sm, Eu 및 Ce를 포함한 40개 원소들을 polytrifluoromonoethylethylene(kel-F)와 tri(2-ethylhexyl) phosphate(TEHP)를 사용하여 역상분배 크로마토그래피로 분리한 다음 axial 방향의 ICP-AES로 측정하였다¹⁰. 또 Frances와 Alan은 우라늄 화합물에

미량으로 존재하는 발열반응 원소 즉, Gd, Dy, Sm 및 Eu를 측정하기 위하여 먼저 과량의 우라늄을 Alamine 336을 사용한 용매추출법으로 제거한 다음, 2차로 양이온교환수지를 사용하여 위의 원소들을 분리하고 DCP-AES로 측정하였다¹¹.

우라늄 주성분으로부터 미량성분의 란타늄 원소를 ICP-AES로 정량하기 위하여 분리과정을 반드시 거쳐야 하며 이 분리과정은 많은 시간을 필요로 한다. 특히 이온교환 크로마토그래피에 의한 분리방법은 시료의 매트릭스를 질산에서 염산으로 바꾸기 위한 과정이 더 필요하므로 시간이 더 많이 소요되는 단점이 있다. 한편, 우라늄과 같이 원자방출 스펙트럼이 많을지라도 측정하고자 하는 원소의 함량이 고체 기준으로 수 % 이상 존재할 경우 주성분에 의한 분광학적 간섭이 없다면 매트릭스 간섭이 비교적 작은 ICP-AES로 바로 분석이 가능할 것이다¹².

본 연구에서는 혼합 핵연료의 조성구분과 비슷한 모의 용액 중의 가돌리늄을 ICP-AES로 바로 측정이 가능한지 조사하였다. 이 방법의 정확도를 확인하기 위하여 바로 측정된 결과와 음이온교환 크로마토그래피로 분리한 다음 측정된 결과를 비교 및 평가하였다. 또한 이 방법을 가돌리늄의 함량이 수 퍼센트인 $UO_2-Gd_2O_3$ 혼합 핵연료 중의 가돌리늄 정량에 적용하였다.

2. 실험

2.1. 기기 및 장치

실험에 사용한 ICP-AES는 프랑스 Jobin Yvon사의 모델 JY 38 PLUS 및 ULTIMA 2C이었다. 전자의 기기 제원과 작동 조건은 다른 논문에 나타내었으며¹², 후자의 작동조건은 Table 1에 나타내었다. 우라늄으로부터 가돌리늄을 분리하기 위하여 폴리에틸렌 재질의 일회용 피펫(직경 0.7 cm의, 길이 4 cm)을 음이온교환수지관으로 사용하였다.

2.2. 시약

질산(70%)과 염산(32%)은 Merck사의 제품을 정제하지 않고 그대로 썼으며 $UO_2-Gd_2O_3$ 핵연료 펠렛은 한국원자력연구소에서 제조한 것을 사용하였다. 음이온교환 크로마토그래피의 회수율을 측정하기 위한 모의 용액은 가돌리늄과 우라늄의 경우 각각 Spex사의 표준용액 1,000 mg/L과 10,000 mg/L으로 가돌리늄은 50 mg/L, 우라늄의 농도는 1,000 mg/L으로 만들었다. 우라늄과 가돌리늄의 표준용액 농도는 각각 10 mg/L

Table 1. Operating conditions for the ULTIMA 2 C spectrometer

Item	Conditions
System	Combination of sequential and simultaneous type
Focal length	1 m (sequential type) 0.5 m (simultaneous type)
Mounting	Czerny-Turner (sequential type) Paschen-Runge (simultaneous type)
Grating	Double order of 2,400 grooves (sequential type) 3,600 grooves (simultaneous type)
Power	1,000 W
Torch	Fassel type
Nebulizer	Meinhard TR 50-C1
Spray chamber	Cyclone type
Plasma gas flow rate	12 L min ⁻¹
Coating gas flow rate	0.2 L min ⁻¹
Auxiliary gas flow rate	0 L min ⁻¹
Nebulizer flow rate	1 L min ⁻¹
Nebulizer pressure	3 bars

로 만들고 두 점으로 검정곡선을 작성하였다. 음이온 교환수지는 Bio-Rad사의 AG 1X8, 200-400 mesh를 사용하였다. 또한 실험에 사용한 증류수(distilled and demineralized water, DDW)는 Millipore Milli-Q를 통과한 2차 증류수로서 비저항이 18.2 MΩ · cm 이상이었다.

2.3. $UO_2-Gd_2O_3$ 핵연료 용해

$UO_2-Gd_2O_3$ 핵연료 100 mg을 정확히 달아 pyrex 비커에 넣고 진한 질산 약 5 mL와 증류수 5 mL를 가하여 가열판 위에서 완전히 용해한 후 냉각시킨 다음 100 mL 용량의 부피 플라스크에 옮겼다. 그리고 증류수로 비커를 씻어 부피 플라스크에 옮기고 증류수로 눈금까지 채웠다.

가돌리늄을 우라늄 매트릭스로부터 분리하기 위하여 핵연료 용해 용액을 1 mL 취하여 비커에 넣고 가열판과 적외선 램프를 이용해서 증발, 건조하였다. 1 mL의 진한 염산을 가하고 다시 증발, 건조하는 조작을 3 회 반복하여 완전히 염화물로 바꾼 다음 2 mL의 6 M 염산으로 용해시켜 분리를 위한 최종 시료로 하였다.

2.4. 음이온교환수지관 준비

비커에 Bio-Rad AG 1X8, 200-400 mesh 수지를 적당량 넣고 증류수로 1~2회 세척한 다음 묽은 염산

(1:1, v/v)을 가하고 약 30분 동안 방치한 후 증류수로 3~4회 씻었다. 직경 0.7 cm의 폴리에틸렌 재질의 일회용 피펫으로 만든 분리관의 아래쪽 끝을 유리솜으로 막고 증류수를 10 cm 정도 채운 다음 세척한 수지를 주입하여 4 cm 높이까지 채웠다(유속은 대략 5 mL/60 min). 5 mL의 5~6 M 염산으로 수지를 씻고, 증류수로 염산을 완전히 씻은 다음 증류수를 채워 수지가 마르지 않게 보관하였다.

2.5. 가돌리늄 분리

모의 용액의 산의 매질을 염산으로 바꾸기 위하여 우라늄의 함량이 대략 1 mg/mL인 용액을 1 mL 취하여 비커에 옮기고 가열판 또는 IR-lamp를 이용해서 증발, 건조하였다. 진한염산(비중 1.18) 1 mL을 가하고 증발, 건조하여 염화물 형태로 바꾸었다. 질산 매질이므로 완전히 염화물 형태로 바꾸어 주기 위하여 증발, 건조 과정을 3 회 더 반복하였다. 최종적으로 6 M 염산 2 mL로 용해하고 준비한 분리관의 상단에 주입하였다. 시료의 산의 매질을 염산으로 바꾸는 동안 충전부피의 3~4배의 6 M 염산을 음이온교환수지관에 흘려주어서 분리 조건으로 조절하였다. 컬럼에 흡착되지 않고 통과하는 란탄족 원소를 받을 50 mL 용량의 비커를 수지관 아래에 놓고 0.08 mL/min의 유속으로 용출액을 받았다. 6 M 염산 2 mL와 5 mL로 각각 비커를 씻어서 분리관의 상단에 주입하고, 전체 용출액을 모아 증발, 건조하여 0.1 M 염산으로 다시 녹이고 10 mL 부피플라스크에 채웠다. 10 mg의 우라늄은 농도가 진하지 않아 수지관(지름 0.7 cm × 길이 4 cm)에 흡착된 것을 육안으로 확인할 수 없으므로 가돌리늄 용출액에서 우라늄을 ICP-AES로 측정하였다(수지 교환능=1.2 meq/mL). 수지와 결합하여 컬럼에 남아 있는 우라늄은 0.1 M 염산 10 mL와 증류수 5 mL로 탈착시키고 수지는 재 사용하였다.

2.6. 우라늄 매질에서 가돌리늄 파장 조사

우라늄의 영향을 받지 않는 가돌리늄의 파장을 찾기 위하여 우라늄의 농도를 10, 100, 200, 300 및 500 mg/L로 변화시키면서 우라늄에 의한 파장 간섭 정도를 11개의 가돌리늄 파장에서 5 mg/L의 가돌리늄 용액과 비교하였다. 선택한 파장의 좌우 0.0805~0.0914 nm 범위를 조사하였으며, integration time은 스텝 당 0.05초, 스텝 크기는 파장에 따라 0.0027~0.0030 nm 범위이었다. 이러한 파장조사 결과는 알맞은 파장선택과 바탕값의 위치를 정하는데 이용하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 가돌리늄 파장 선택

Fig. 1에서 알 수 있듯이 336.223 nm의 가돌리늄 파장이 우라늄으로부터 분광학적 간섭 영향이 가장 작았다. 이 파장에 인접한 336.171 nm와 336.274 nm의 우라늄 피크는 사용한 분광기로 분해가 가능하였으며 아크나 스파크를 들뜸원으로 하여 200,004 nm의 몰리브덴부터 999.97 nm의 코발트까지 100,000 개 이상의 방출선 파장을 수록한 Massachusetts Institute of Technology(MIT) Wavelength Tables¹³에서 이 두 파장을 확인할 수 있었다. 336.205 nm의 피크는 우라늄의 농도가 10 mg/L일 때 바탕값과 비슷하였으나 100 mg/L 이상에서는 작은 피크가 관찰되었으며 이 파장도 MIT Wavelength Tables에서 확인할 수 있었다. 조사한 대부분의 가돌리늄 파장은 우라늄의 농도가 10 mg/L일 때 거의 영향을 받지 않았으나 우라늄의 농도가 100 mg/L로 증가할 경우, 대부분의 가돌리늄 파장은 바탕값이 증가하거나 또는 작은 우라늄 피크들이 가돌리늄 파장 위치에 나타나 사용할 수 없었다. 이 파장에서 우라늄의 농도가 100 mg/L일 때 바로 측정할 수 있는 최소의 가돌리늄 농도는 0.05 mg/L이었다. 즉, 가돌리늄의 함량이 0.05 % 이상이면 분리하지 않고 바로 측정이 가능하다. 364.620 nm 파장은 JY ULTIMA 2C를 사용하여 Fig. 2에 나타내었듯이 우라늄의 농도가 증가할수록 가돌리늄 파장 위치에서 우라늄에 의한 분광학적 간섭은 관찰되지 않았으나 가

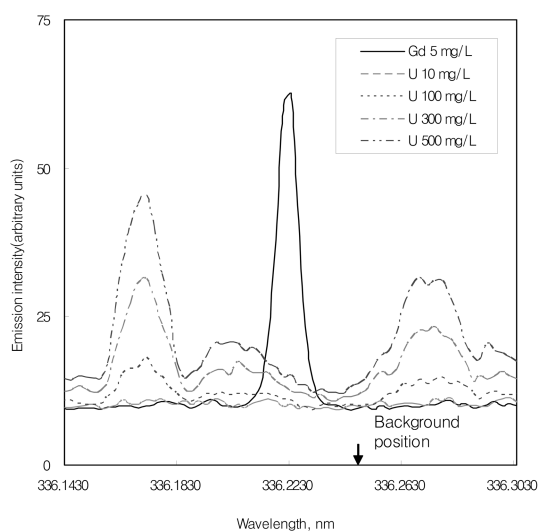


Fig. 1. Scan in the vicinity of Gd 336.223 nm.

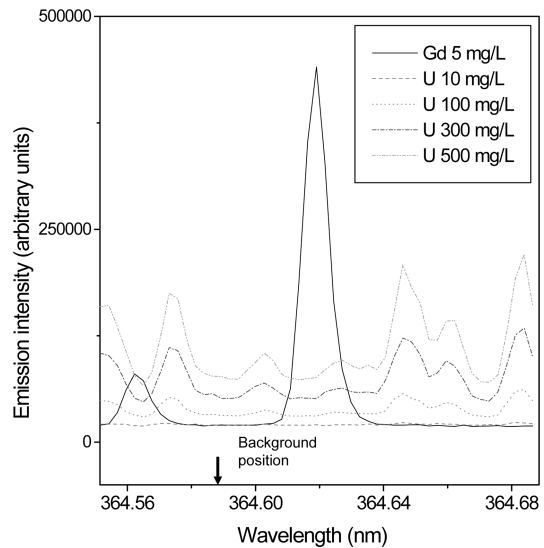


Fig. 2. Scan in the vicinity of Gd 364.620 nm.

돌리늄 방출세기와 바탕값이 비례적으로 증가하지 않았다.

3.2. 우라늄 매트릭스로부터 가돌리늄 분리

염산매질에서 6가 우라늄의 분배계수는 농도가 증가할수록 증가하여 6 M 이상에서는 거의 비슷하며 8 M에서 최대값을 갖는다¹⁴. 따라서 6 M 이상의 염산에서 6가의 우라늄 이온은 쉽게 음이온교환수지에 흡착되며 3 M 이하의 염산에서 탈착된다¹⁴. Ryan은 수지에 흡착된 우라닐클로라이드의 화학종이 단순한 $UO_2Cl_4^{2-}$ 이 아니라 $UO_2Cl_4^{2-}$ 의 단위체 두 개가 히드로늄 이온과 수소결합으로 존재하여 알코올 용액에서는 $UO_2Cl_4^{2-}$ 의 화학종으로, 수용액에서는 테트라클로로착물 $[H_3O(H_2O)_3(UO_2Cl_4)_2]^{3+}$ 이라고 주장하였다¹⁵. 한편, Heitner-Wirguin와 Gantz는 음이온기에서 히드로늄 이온에 수소결합이 존재할 것 같지 않으므로 가시영역의 스펙트럼으로부터 추론하여 $UO_2Cl_3^-$ 와 $UO_2Cl_4^{2-}$ 이라고 발표하였다¹⁶. 어느 경우여라도 우라늄은 음이온교환수지와 결합하여 컬럼에 남는 반면에 가돌리늄을 포함한 란타늄 원소들은 염산 매질에서 염소 이온과 란타늄 원소들과의 착물상수가 크지 않으므로 금속이온 (Gd^{3+})으로 존재하여 컬럼을 바로 통과하는 것으로 추측된다.

염산 화합물로 바꾼 시료 약 1 mL를 컬럼에 loading 하고 6 M 염산 7 mL로 컬럼을 통과시켜 가돌리늄을 용출시킨 용액 중의 우라늄을 측정된 결과 검출되지

Table 2. Effect of uranium on Gd intensity at 336.223 nm

U concentration (mg/L)	Gd Intensity ^a	Background ^b	Net intensity
0	69.5±2.5	9.8±0.1	59.3±2.5
100	71.1±1.4	11.5±0.2	59.6±1.4
200	72.6±1.6	13.4±0.2	59.3±1.5
300	74.7±1.5	15.3±0.4	59.4±1.3
500	78.4±2.0	19.3±0.5	59.2±1.9

^aConcentration of Gd in each sample : 5 mg/L

^bBackground position : + 0.0268 nm

Table 3. Effect of uranium on Gd intensity at 364.620 nm

U concentration(mg/L)	Gd Intensity ^a	Background ^b	Net intensity
0	54.5±1.9	10.2±0.1	44.3±1.8
100	57.5±2.2	12.0±0.3	45.5±2.0
200	59.4±1.9	13.7±0.5	46.0±1.5
300	61.3±1.8	15.4±0.4	45.9±1.6
500	65.9±1.0	18.8±0.8	47.1±0.6

^aConcentration of Gd in each sample : 5 mg/L

^bBackground position : - 0.0360 nm

않았다. 가돌리늄을 용출시킨 다음 우라늄을 탈착시키기 위하여 0.1 M 염산 10 mL와 증류수 5 mL로 각각 컬럼을 씻고 합한 용액 중의 우라늄을 측정된 결과 회수율은 99.7±0.31 %(n=3)로 거의 대부분이 탈착되었으며, 증류수 5 mL로 한번 더 컬럼을 씻은 용액에서 우라늄은 검출되지 않았다.

3.3. UO₂-Gd₂O₃ 핵연료 중 가돌리늄 정량

우라늄 매트릭스로부터 가돌리늄을 분리하지 않고 바로 측정이 가능한지 알아보기 위하여 우라늄의 농도변화에 따른 간섭정도를 Table 2과 3에 나타내었다. 이 결과는 기기로 3 회 측정하고 3 회 반복하여 얻은 평균값이다. 우라늄에 의한 영향이 가장 적은 336.223 nm의 파장은 Fig. 1에 나타내었듯이 우라늄 농도가 증가함에 따라 336.205 nm 위치에서 작은 우라늄 피크가 관찰되었다. 그러나 Table 2에서 알 수 있듯이 순수한 가돌리늄의 방출선 세기는 거의 일정하였으므로 검정곡선을 작성할 때 바탕값의 위치를 +0.0268 nm로 정하면 우라늄의 영향은 무시할 수 있는 것으로 확인되었다. 한편, 364.620 nm 파장은 조사한 가돌리늄의 파장 중에서 두 번째로 우라늄의 영향을 작게 받았으나 우라늄의 농도가 증가할수록 순수한 가돌리늄의 방출세기와 바탕값도 조금씩 증가하여 우라늄의 농도가 100 mg/L와 500 mg/L일 때 순수한 가돌리늄의 방출세기는 우라늄이 없을 때와 견주어 각각

2.7%와 6.3% 증가하였다(Table 3). 이때 364.620 nm의 바탕값 위치는 -0.036 nm이었다. 따라서 이 파장을 사용하려면 표준물 첨가법을 적용해야 정확한 결과를 얻을 수 있을 것으로 사료된다.

매트릭스로 우라늄이 존재할 경우 Table 2와 3 그리고 Fig. 1과 2에 나타내었듯이 우라늄의 농도가 증가하면 바탕값도 증가하므로 검정곡선을 두 가지 방법으로 작성한 다음 각각을 측정하였다. 즉, 가돌리늄 표준용액을 사용하여 바탕값을 정하고 검정곡선으로부터 얻은 우라늄과 가돌리늄이 혼합되어 있는 용액에서 가돌리늄의 회수율은 두 파장(336.223 nm와 364.620 nm)에서 각각 100%와 101%이었다(Table 4). 이 때 우라늄과 가돌리늄의 농도는 각각 100 mg/L과 5 mg/L이었다. 한편, 앞에서와 같은 혼합 용액을 가지고 바탕값을 정하지 않은 검정곡선으로부터 얻은 가돌리늄의 회수율은 Table 4에서 알 수 있듯이 각각 104%와 103%이었다. 따라서 UO₂-Gd₂O₃의 핵연료에 있는 가돌리늄을 분리과정 없이 바로 측정할 경우는 검정곡선을 작성할 때 바탕값을 포함한 전체 방출세기에서 바탕값의 방출세기를 제외한 net 방출세기로 측정해야 정확한 결과를 얻을 수 있었다. 모의 혼합 핵연료 용액으로 가돌리늄을 바로 측정한 결과와 음이온 교환 크로마토그래피로 분리한 다음 측정된 결과는 Table 5에 나타낸 바와 같이 각각 100%와 99.0%로 큰 차이가 없으므로 가돌리늄을 바로 측정할 수

Table 4. Comparison of Gd recovery in simulated solution with and without background correction at 336.223 nm and 364.620 nm, respectively

Gadolinium (mg/L) ^a							
336.223 nm				364.620 nm			
Bk ^b correction		No Bk ^b correction		Bk ^b correction		No Bk ^b correction	
Added	Found	Added	Found	Added	Found	Added	Found
5.00	5.01	5.00	5.19	5.00	5.00	5.00	5.22
	5.00		5.23		5.03		5.01
	4.99		5.23		5.05		5.23
	5.00±0.01		5.22±0.02		5.03±0.03		5.15±0.12

^aSimulated solution : U 100 mg/L + Gd 5 mg/L^bBackground

Table 5. Comparison of Gd recovery in simulated solution with and without separation

Gadolinium (mg/L) ^a					
No separation ^b			Separation ^c		
Added	Found	RSD	Added	Found	RSD
5.00	5.01		5.00	4.96	
	5.00			4.96	
	4.99			4.92	
	5.00±0.01	0.2		4.95±0.02	0.4

^aSimulated solution : U 100 mg/L + Gd 5 mg/L^bMeasurement of Gd at 336.223 nm with background correction at + 0.0268 nm^cMeasurement of Gd at 336.223 nm without background correctionTable 6. Comparison of analytical results by using ICP-AES for Gd in UO₂-Gd₂O₃ fuel with and without separation

5 % Gd ₂ O ₃		Relative difference, %	10 % Gd ₂ O ₃		Relative difference, %
No separation ^a	Separation ^b		No separation ^a	Separation ^b	
4.95	4.95		10.03	9.73	
4.96	4.97		10.27	9.94	
4.99	4.92		10.04	9.95	
4.97±0.02	4.95±0.03	-0.4	10.11±0.14	9.87±0.12	-2.4

^aMeasurement of Gd at 336.223 nm with background correction at + 0.0268 nm^bMeasurement of Gd at 336.223 nm without background correction

있다는 것을 알 수 있었다.

질산으로 녹인 UO₂-Gd₂O₃ 핵연료를 두 가지 방법으로 측정된 결과를 Table 6에 나타내었다. 분리한 다음 측정된 값을 기준으로 두 방법간의 상대편차는 5%와 10%의 Gd₂O₃에 대하여 각각 -0.4%와 -2.4%이었으며, 위의 Table 6에서 알 수 있듯이 바로 측정된 값과 분리한 다음 측정된 값의 상대표준편차는 5%와 10%의 Gd₂O₃에 대하여 각각 0.4~1.4% 및 0.6~1.2% 범위이었다. 두 방법으로 측정된 가돌리늄의 양은 분리한 다음 측정된 값을 기준으로 할 때

5% 범위 내에서 잘 일치하였다. 따라서 위의 결과로부터 우라늄 매트릭스에서 가돌리늄의 함량이 고체기준으로 0.05% 이상 존재할 경우는 분리과정을 거치지 않고 바로 ICP-AES로 가돌리늄을 정량 분석할 수 있다고 사료된다.

4. 결 론

질산 매질의 모의 UO₂-Gd₂O₃ 용액을 사용하여 우라늄 매트릭스로부터 가돌리늄을 분리하지 않고 바로

ICP-AES로 측정할 수 있었다. 가돌리늄을 바로 측정할 때 우라늄이 가돌리늄 파장에 미치는 분광학적 간섭 정도를 알아보기 위하여 11개의 가돌리늄 스펙트럼을 조사한 결과 336.223 nm의 파장이 분석선으로서 가장 적합하였으며, 이 파장으로부터 오른쪽으로 0.0268 nm만큼 떨어진 위치에서 바탕값을 빼주어야 더 정확한 분석결과를 얻을 수 있었다. 따라서 이 방법을 가돌리늄의 함량이 수 퍼센트인 $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ 핵연료에 적용하여 음이온 교환 크로마토그래피에 의한 분리 과정을 거치지 않고 바로 ICP-AES로 정량 분석할 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음. $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ 핵연료를 제공해준 한국원자력연구원 핵연료제조기술개발부의 송근우 박사님과 김건식 박사님에게 감사를 드립니다.

참고문헌

1. H. H. Durmazucar, U. Colak, B. Sarikaya, G. Gunduz, *Nucl. Eng. Des.*, **203**, 57 (2001).
2. L. Goldstein, A. A. Strasser, *Nucl. Technol.*, **60**, 352 (1983).
3. A. G. I. Dalvi, C. S. Deodhar, B. D. Joshi, *Talanta*, **24**, 143 (1976).
4. E. A. Huff, E. P. Horwitz, *Spectrochimica Acta*, **40B**, 279 (1985).
5. T. K. Seshagiri, Y. Babu, M. L. Jayanth Kumar, A. G. I. Dalvi, M. D. Sastry, B. D. Joshi, *Talanta*, **31**, 773 (1984).
6. 1987 Annual Book of ASTM Standards, Vol. 12.01, Nuclear Energy(1), R. A. Storer, Easton, Philadelphia, U.S.A., 350 (1987).
7. A. S. Al-Ammar, H. A. Hamid, B. H. Rashid, H. M. Basheer, *J. Chromator.*, **537**, 287 (1991).
8. R. K. Malhotra, K. Satyanarayana, *Talanta*, **50**, 601 (1999).
9. C. H. Lee, M. Y. Suh, K. S. Choi, J. S. Kim, B. C. Song, K. Y. Jee, W. H. Kim, *Anal. Chim. Acta*, **428**, 133 (2001).
10. P. Fuxing, Y. Suling, H. Qinghua, W. Xiaoping, M. Heying, H. Yanmin, X. Yuxin, X. Yi, W. Tingfang, *Spectrochimica Acta*, **41B**, 1211 (1986).
11. F. Flavelle and A. D. Westland, *Talanta*, **33**, 445 (1986).
12. K. S. Choi, C. H. Lee, S. D. Park, Y. S. Park, K. S. Joe, *Anal. Sci. & Tech.*, **13**, 291 (2000).
13. G. R. Harrison, *Massachusetts Institute of Technology Wavelength Tables*, M.I.T. Press, Cambridge, England, 1969.
14. H. O. Haug, *Gmelin Handbook of Inorganic Chemistry, Uranium*, Suppl. Vol. D3, R. Keim, Y. Marcus, C. Keller, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, Germany, 33-34 (1982).
15. J. L. Ryan, *Inorg. Chem.*, **2**, 348 (1963).
16. G. Heitner-Wirguin, M. Gantz, *Israel J. Chem.*, **12**, 723 (1974).