2003추계학술발표회논문집
한국원자력학회

사용후핵연료 내 삼중수소 분석 신뢰도 평가

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

이창헌, 김정석, 서무열, 김영복, 송병철, 김원호
한국원자력연구소
대전시 유성구 덕진동 150. **사서함** 105. nchlee1@kaeri.re.kr

요약

가압 경수로 사용후핵연료에 미량 함유되어 있는 삼중수소의 정량기술을 확립하였다. 방사성 폐액의 방출을 억제하고 분석자의 방사선 피폭을 줄이기 위하여 하나의 시료로부터 탄소-14와 삼중수소를 순차적으로 회수할 수 있도록 분리조건을 최적화하였다. 사용후핵연료 질산 용해과정에서 $^{14}CO_2$와 함께 휘발하는 $^{129}I_2$는 Ag가 침윤되어 있는 silica gel을 사용하여 제거하였다. $^{14}CO_2$는 1.5 M NaOH에 포집시켜 회수하였으며 삼중수소가 산화되어 생성된 $^{3}H_2O$는 증류시켜 회수하였다. 삼중수소의 평균 회수율은 97.9%, 상대표준편차는 0.9% (n=3) 이었으며, 37,000 MWd/MtU 연소도의 사용후핵연료를 대상으로 삼중수소를 분석하고 표준물첨가법으로 분석신뢰도를 평가하였다.

Abstract

An analytical technique for trace amounts of tritium in spent Pressurized Water Reactor (PWR) fuels 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 which ^{14}C and ^{3}H can be sequentially recovered from a single sample was optimized. $^{14}CO_2$ evolved during dissolution of the spent PWR fuels with nitric acid, was trapped in an aliquot of 1.5 M NaOH. $^{129}I_2$, a volatile beta emitter, which was recovered along with $^{14}CO_2$ was removed using a silver nitrate-impregnated silica gel absorbent. After recovering $^{14}CO_2$, ^{3}H as $^{3}H_2O$ was selectively recovered by distillation. Its recovery yield was 97.9% with a relative standard deviation of 0.9% (n=3). ^{3}H in a spent PWR fuel with burnups of 37,000 MWd/MtU was analyzed and reliability of this analytical technique was evaluated by standard addition method.

1. 서 론

사용후핵연료에 함유되어 있는 핵분열생성물의 화학분석은 사용후핵연료의 특성을 규명하고 연소거동을 예측하는데 필요한 기본적인 자료를 제공할 수 있다.

삼중수소 (^3H 또는 T)는 고속 중성자 반응(^{14}N + n → ^{12}C + ^3H)을 통하여 성층권에서 자연적으로 생성되며 핵무기 실험, 원자력발전소 가동 그리고 사용후핵연료 재처리 과정을 통하여 인공적으로 생성되기도 한다[1]. 핵연료 연소과정에서 ^3H는 ternary fission과 불순물로 함유되어 있는 ^6Li 및 ^{14}N의 중성자 방사화에 의해 생성되며[2], Sellafield의 BNFL은 1995년 원자력발전 과정에서 2.7 × 10^{15} Bq을 바다로 그리고 5.90 × 10^{14} Bq을 대기권으로 방출시켰다고 발표한 바 있다[3].

사용후핵연료에 HT와 같은 화학종으로 함유되어 있는 ^3H는 핵연료 내에서 생성된 후 많은 양이 지르칼로이 피복관으로 이동하며[4] 이로 인하여 취화된 피복관이 원자로 운영 중에 파손될 가능성이 있다는 연구결과가 보고되어 있다.

^3H는 낮은 베타 에너지 (E_{max} = 18.6 keV) 방출체이기 때문에 액체섬광계수법으로 분석할 때 분석에 영향을 미칠 수 있는 방사성 핵종을 계측 전에 반드시 제거해야 한다. 일반적으로 물, 토양 등과 같은 환경시료에 함유되어 있는 ^3H에 대한 분석결과는 많이 보고되고 있으나[5] 실제 사용후핵연료와 피복관에 함유되어 있는 ^3H의 분석사례는 자세히 보고되어 있지 않다.

지르칼로이 또는 이와 유사한 고체물질에 미량 함유되어 있는 ^3H는 전기 전극로의 탄소관에서 시편을 녹일 때 방출되는 ^3H를 운반기체 (6% 수소/헬륨)와 함께 500 600 ℃를 유지하는 CuO관을 통과시켜 삼중수소수 (^3H_2O)로 산화시킨 후 약 6 ℃의 냉각수에 포집시켜 회수할 수 있다[6]. 이 방법은 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 ℃에서 가열시켜 U_3O_8으로 산화시키는 voloxidation 공정에서 ^3H는 대부분 (99.8%) ^3H_2O로 방출되며 핵연료에 남아있는 ^3H는 질산 용해과정에서 ^3H_2O로 산화되어 용액에 남아있음이 확인되었다[7,8]. 한편, JAERI가 발표한 사용후핵연료 용해에 관한 연구결과에 의하면 질산 용해용액에 함유되어 있는 ^3H의 약 1% 가 용해과정에서 HT로서 방출되지만 대부분 ^3H_2O로 용해용액에 안정하게 남아있다[4]. 따라서 고가의 장비를 사용하여 고체 시편으로부터 직접 ^3H를 회수하는 것보다 사용후핵연료 용해용액으로부터 ^3H를 회수하는 것이 더 경제적임을 알 수 있다. 그러나 사용후핵연료 용해용액에는 액체섬광계수법으로 ^3H를 정량할 때 간섭할 수 있는 많은 악틴족 원소들과 핵분열생성물들이 함유되어 있다. 따라서 ^3H의 양을 계측하기 전에 반드시 정량적으로 분리, 회수해야 하며, 분리방법으로는 혼합 이온교환수지를 사용하는 방법과 증류방법이 알려져 있으나[9,10], 제염효율을 증가시키기 위하여 일반적으로 두 방법을 함께 적용하고 있다.

본 연구에서는 35,000 MWd/MtU 연소도의 경수로 사용후핵연료를 기준 시료로 정하고 이와 화학조성이 유사하도록 제조한 모의 가압 경수로 사용후핵연료 용해용액을 사용하여 ^3H 정량에 필요한 선택적 분리 및 회수 등 제반 실험조건을 최적화하여 삼중수소 분석기술을 확립하였다. 사용후핵연료 용해용액에서 ^3H_2O를 증류법으로 회수할 때 질산 매질에서 휘발하는 RuO_4 외에도 다수의 핵종이 함께 회수될 수 있음을 고려하여 알칼리 매질에서 공존 성분들을 침전시킨 후 ^3H_2O만 선택적으로 회수할 수 있는 방법에 관하여 조사하였다. 또한 최적화된 분리조건에서 37,000 MWd/MtU 연소도의 사용후핵연료에 함유되어 있는 ^3H을 회수하고 액체섬광계수법으로 정량하였으

며 표준물첨가법을 적용하여 확립된 분석기술의 신뢰도를 평가하였다.

2. 실험

2.1. 측정기기 및 증류기

$^{3}H_2O$를 회수하기 위하여 Fig. 1과 같은 유리재질의 증류기를 제작하였다. ^{3}H를 정량하기 위하여 Packard (Tri-Carb 2500, U.S.A.)사의 액체섬광계수기를 사용하였으며, 공존하는 감마 핵종에 의한 오염 여부를 확인하기 위하여 EG & G ORTEC 사의 ADCAM 100 series 감마 분광분석기를 사용하였다

2.2. 시약

Amersham Lab사의 $^{3}H_2O$ 표준용액과 $Na_2{}^{14}CO_3$ 표준용액을 증류수로 희석하여 사용하였다 ($^{3}H_2O$: 2003년 9월 1일: 636.7 Bq/mL 및 $Na_2{}^{14}CO_3$: 238.1 Bq/mL). 실험에 사용된 모든 시약은 분석 시약급으로서 정제하지 않았으며, 이차 증류수는 탈염수를 Milli-Q plus Ultra Pure Water System (Millipore)에 통과시킨 것을 사용하였다. 섬광제로는 Packard사의 Ultima Gold AB를 사용하였다.

2.3. 모의 사용후핵연료 용해용액 제조

10년 냉각시킨 35,000 MWd/MtU 연소도의 사용후핵연료 용해용액과 화학조성이 유사한 비방사성 모의용액을 제조하기 위하여 Spex사의 유도결합 플라스마 원자방출분광분석 검정용 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 mL)에는 ^{14}C 회수를 위하여 첨가한 $CaCO_3$가 5 g 첨가되어 있으며 $^{3}H_2O$과 $Na_2{}^{14}CO_3$ 표준용액은 회수실험을 할 때 첨가하였다.

2.4. 사용후핵연료 용해

2년 냉각시킨 37,000 MWd/MtU 연소도의 사용후핵연료 0.849 g과 $CaCO_3$ 2.5 g을 Hot Cell 안에 설치되어 있는 사용후핵연료 용해 ^{14}C 회수장치 (Fig. 1)의 둥근바닥 플라스크에 넣었다. 8 M HNO_3는 용해 직전에 넣고 12 시간동안 가열시킨 다음 용해용액을 무게를 알고 있는 폴리에틸렌 용기로 옮겼다.

2.5. 시료 채취 및 시료용액 준비

사용후핵연료 용해용액 0.1 mL(약 60 mR/h)를 채취하여 25 mL 용량 플라스크로 옮긴 다음 8 M HNO_3로 25 mL 되게 하여 최종 시료용액으로 사용한다.

2.6. 증류법에 의한 $^{3}H_2O$ 회수

증류수 4.0 mL를 $^{3}H_2O$ 회수장치 (Fig. 2)의 증류용 둥근 바닥 플라스크에 넣고 NaOH 펠렛 (약 1 g)과 비등석을 넣었다. 증류액을 모으기 위하여 20 mL 용량의 플라스크를 증류액 수집기의 용출구 아래에 설치하였다. 냉각 콘덴서 위에 증류수를 1 mL 넣어 증류액 수집기 용출구를 증류수로 채운 후 최종 시료용액을 1.0 mL 넣고 가열시켰다. 냉각수 온도가 14 ℃를 유지되도록 하였으며 증류가 완결되어 증류수 수집기 용출구 끝에 물방울이 모이지 않으면 실온까지 냉각시킨 다음 증류수 5 mL를 둥근 바닥 플라스크에 넣고 증류를 1회 더 실시하였다. 마지막으로 증류수로 냉각 콘덴서를 씻어 수집 플라스크로 모은 다음 증류수로 20 mL 되게 하였다

2.7. 액체섬광계수법에 의한 ^{3}H의 정량

폴리에틸렌 재질의 액체섬광계수용 용기에 섬광제 15 mL와 증류액을 1 mL씩 넣고 잘 섞은 다음 2 18.6 keV 범위에서 30분간 각각 계측하였다.

2.8. 표준물첨가법에 의한 분석신뢰도 평가

5 개의 액체섬광계수용 용기에 섬광제 15 mL와 증류액을 각각 1 mL씩 넣고 0.0 300 Bq 범위의 $^{3}H_2O$ 표준용액을 첨가한 다음 2 18.6 keV 범위에서 30분간 각각 계측하였다. 이와 별도로 시료용액 1 mL와 0.0 300 Bq 범위의 $^{3}H_2O$ 표준용액을 증류장치에 넣고 증류한 후 증류액에 함유되어 있는 ^{3}H의 양을 액체섬광계수법으로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. ^{3}H 정량 간섭 핵종 제거

사용후핵연료에 함유되어 있는 ^{14}C과 ^{3}H는 각각 ^{14}CO와 HT로 존재하며[4,11] 사용후핵연료를 용해시킬 때 ^{14}CO는 공기 중의 산소와 반응하여 대부분 $^{14}CO_2$로[12-14] 방출되고 ^{3}H는 $^{3}H_2O$로 산화되어 용해용액 내에 안정하게 남아 있는 것으로 알려져 있다[4]. 따라서 본 연구에서는 사용후핵연료 용해 과정에서 방출되는 $^{14}CO_2$를 먼저 회수한 후 일정량의 용해용액을 장갑 상자로 옮겨 ^{3}H를 증류법으로 회수하는 과정을 설정하여 하나의 시료로부터 ^{14}C과 ^{3}H을 순차적으로 회수, 정량하도록 함으로써 방사성 폐액의 방출을 억제하고 분석자의 방사선 피폭을 줄이도록 하였다. 용해과정에서 방출되는 $^{14}CO_2$를 정량적으로 알칼리 용액에 포집시키기 위하여 헬륨과 같은 운반기체 주입구를 이 장치에 설치하는 대신에 질산과 반응할 때 운반기체로 CO_2를 방출할 수 있는 $CaCO_3$를 사용후핵연료를 용해할 때 첨가하도록 하였다. 사용후핵연료 용해 및 $^{14}CO_2$ 회수과정에서 함께 방출되는 불활성의 ^{85}Kr은 화학반응 없이 방출되며 ^{129}I는 $AgNO_3$가 침윤된 silica gel에 흡착시켜 제거하였다.

$^{3}H_2O$ 표준용액을 첨가하지 않은 모의 사용후핵연료 용해용액을 대상으로 "2.6. $^{3}H_2O$ 회수 방법"에 따라 증류액을 얻은 후 ICP-MS로 공존 원소들에 의한 오염도를 조사하여 Table 2에 나타내었

다. 비교를 위하여 모의 사용후핵연료 용해용액 대신 증류수를 대상으로 동일한 방법으로 오염도를 조사하고 “Blank”로 그 결과를 나타내었다. 전체적으로 "Test"의 결과가 “Blank"의 결과보다 작은 것으로 미루어 볼 때 모의 사용후핵연료의 금속성분들에 의한 오염은 발생하지 않는 것으로 판단된다. 모의 사용후핵연료 용액에 주성분으로 첨가한 우라늄이 극미량 검출되었으나 실제 ^{3}H와 함께 증류된 것인지 또는 외부로부터의 오염에 의한 것인지 확인되지 않았다. 또한 모의 사용후핵연료 용해용액에 ^{99}Tc (63 Bq)을 첨가한 후 동일한 방법으로 증류하고 액체섬광계수법으로 ^{99}Tc의 오염정도를 조사한 결과 증류액에서 ^{99}Tc을 전혀 발견할 수 없었다.

3.2. ^{3}H 회수거동 조사

$^{3}H_2O$는 $^{14}CO_2$를 회수한 후 Fig 2와 같은 증류장치를 사용하여 회수하였다. 질산 매질의 사용후핵연료 용해용액을 90 ℃ 이상에서 가열시킬 때 RuO_4와 같은 휘발성 산화물이 함께 회수되는 것을 방지하기 위하여 NaOH를 넣어 악틴족 원소 및 공존하는 핵분열생성물 원소들과 함께 침전시켰다. $^{3}H_2O$를 완전히 증류하기 위하여 과도하게 열을 가해 증발, 건조시킬 경우 고열로 증기화된 금속염에 의해 오염이 발생할 수 있다. 따라서 용해용액을 완전히 증발, 건조시키지 않고 수 차례 증류수를 첨가하여 증류시킴으로써 정량적인 회수가 가능하도록 하였다. Fig. 3에 나타낸 바와 같이 초기 증류에도 95% 이상의 $^{3}H_2O$가 회수되었으므로 본 연구에서는 $^{3}H_2O$를 2회 증류하여 회수하였다.

3.3. ^{3}H 회수율 측정

$^{3}H_2O$ 표준용액 1 mL (665 Bq)를 첨가한 모의 사용후핵연료 용해용액 3개를 앞에서 확립된 절차에 따라 실험하고 증류액에 함유되어 있는 ^{3}H의 양을 액체섬광계수법으로 측정하여 회수율을 결정하였다. Table 3에 나타낸 바와 같이 평균 회수율은 97.9% 그리고 상대표준편차는 0.9%이었다.

3.4. 사용후핵연료 중 ^{3}H 정량 및 분석신뢰도 평가

JAERI의 연구결과에 의하면 핵연료 조사과정에서 생성된 ^{3}H의 총량은 연소도에 따라 선형적으로 증가한다. 그러나 원자력 발전 과정에서 ^{3}H이 사용후핵연료로부터 지르칼로이 피복관으로 이동하고 사용후핵연료와 피복관 간에 ^{3}H 분배비가 연소도에 따라 선형적 관계를 갖지 않는다. 이와 같은 이유로 사용후핵연료에 함유되어 있는 ^{3}H의 참값을 얻을 수 없기 때문에 본 연구에서는 표준물첨가법을 적용하여 사용후핵연료에 함유되어 있는 ^{3}H의 분석결과에 대한 신뢰도를 평가하고자 하였다.

37,000 MWd/MtU 연소도의 사용후핵연료에 함유되어 있는 ^{3}H을 회수, 정량한 결과를 Table 4에 나타내었다. 사용후핵연료 1 g에 12,891.6 KBq[348.4 μCi (0.036 ㎍)의 ^{3}H이 함유되어 있었으며 이 결과는 ORIGEN2 전산코드로 계산한 결과[19,684 KBq [(532 μCi (0.055 ㎍) ^{3}H/g SF]의 65.5%에 해당된다. 따라서 본 연구에서의 결과는 지르칼로이 피복관에 함유되어 있는 ^{3}H을 정량하지 않았으나 JAERI의 연구결과와 같이 ^{3}H 생성량의 34.5%가 지르칼로이 피복관으로 이동하였다고 판단한다.

증류액에 표준물을 첨가하지 않은 시료와 첨가한 시료를 사용하여 Fig. 4와 같은 표준물첨가곡

선을 얻었다. 표준물을 첨가하지 않은 분석결과와 표준물을 첨가한 분석결과는 각각 12,891 KBq/g SF 및 13,527 KBq(365.6 μCi (0.038 μg)/g SF로서 표준물첨가법에 의한 결과를 기준으로 할 때 -4.7%의 편차를 나타내었다 (Table 4, Experiment-2).

이와는 별도로 $^{3}H_{2}O$를 증류하는 과정에서 표준물을 첨가하여 증류과정에서부터 분석신뢰도를 평가하였다. Fig. 5에 나타낸 바와 같이 표준물을 첨가하지 않은 분석결과와 표준물을 첨가하여 얻은 분석결과는 각각 12,738,086 Bq [344.3 μCi (0.036 μg)]/g SF 및 13,242,347.6 Bq [357.9 μCi (0.037 μg)]/g SF로서 표준물첨가법에 의한 결과(Table 4, Experiment-2)를 기준으로 할 때 -3.8%의 편차를 보이고 있다. 이러한 분석결과는 사용후핵연료 용해용액에 함유되어 있는 ^{3}H을 증류법만으로도 선택적으로 분리, 회수할 수 있으며 증류액에서 Fig. 6에서와 같은 Sb, Ce 및 Cs 핵종들이 극미량 검출되었으나 액체섬광계수법으로 정량이 가능하다고 판단한다.

결 론

사용후핵연료 용해용액에 함유되어 있는 ^{3}H을 정량하고 표준물첨가법으로 분석신뢰도를 평가하였다. 증류액에서 사용후핵연료에 함유되어 있는 일부 핵종이 검출되었으나 실제 ^{3}H의 정량에는 거의 영향을 미치지 않았다. JAERI의 연구결과에서와 같이 지르칼로이 피복관에 함유되어 있는 ^{3}H을 정량하지 않았으나 ^{3}H 생성량의 34.5%가 지르칼로이 피복관으로 이동되었다고 판단한다. 사용후핵연료에 함유되어 있는 ^{3}H의 분석결과에 대한 신뢰도를 평가하기 위하여 표준물첨가법을 적용한 결과 표준물첨가에 의한 결과를 기준으로 할 때 -4.7 -3.8%의 편차를 보이고 있으므로 사용후핵연료 용해용액에 함유되어 있는 ^{3}H을 증류법만으로도 선택적으로 분리, 회수할 수 있으며 액체섬광계수법에 의한 정량이 가능함을 알 수 있었다.

참고문헌

[1} UNSCEAR, Sources and Effects of Ionizing Radiation, United Nations Publications, Vienna, Austria, 1977.

[2] G. F. Knoll, Radiation, Determination and Measurement, Wiley, Inc, New York, 1979.

[3] BNFL Annual report on radioactive discharges and monitoring of the environment, 1995 vol. 1, British Nuclear Fuels, Risely, Cheshire, UK, 1995.

[4] Dissolution studies of spent nuclear fuels, JAERI-M 91-010, 1991.

[5] 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.

[6] PNL-ALO-479 Technical Report, 1989.

[7] J. A. Stone and D. R. Johnson, DP-MS-78-7, 1978.

[8] D. R. Johnson and J. A. Stone, DP-MS-77-77, 1978.

[9] E. W. Baumann and K. W. MacMurdo, CONF 771031-1, 1977.

[10] 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 Ba(OH)2 · 8 H_2O 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.

Table 1. Chemical composition of simulated spent PWR fuel dissolver solution

Element	Spent fuel, μg/g	Element μg/100 mL SIM soln.
1)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
1)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
$CaCO_3$	2.5 g	5 g
1)Ag	82.4	0.824
1)I	249.3	2.5

1): Element added to a round bottom flask containing 0.5 mL of simulated spent fuel dissolver solution prior to tritium recovery experiment

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

Table 3. Recovery of ^{3}H from simulated spent PWR fuel dissolver solutions by distillation

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

Table 4. Analytical results obtained by standard addition method

Experiment	Standard	Result, kBq/ g Spent Fuel	Deviation, %
1	No addition	12,891.6 [348.4 μCi (0.036 μg)]	-4.7
	Addition-1	13,527 [(365.6 μCi (0.038 μg)]	
2	No addition	12,738,1 [344.3 μCi (0.036 μg)]	-3.8
	Addition-2	13,242,3 [357.9 μCi (0.037 μg)]	

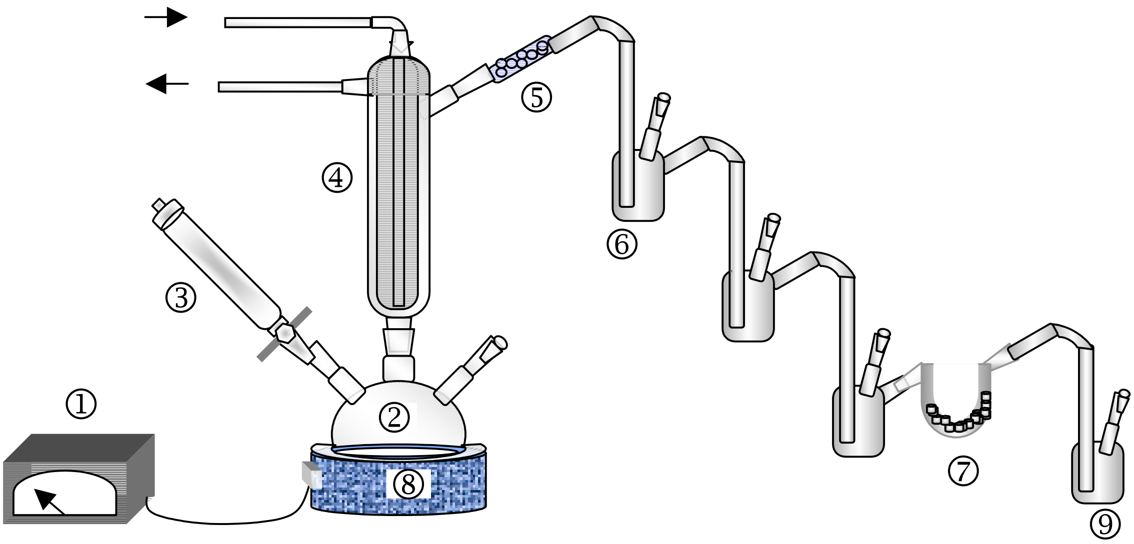

Fig. 1. Apparatus for dissolution of spent PWR fuels and ^{14}C recovery.

① Voltage controller ② 3 -neck dissolution flask
③ Tube for introduction of HNO_3(1+1) ④ Reflux condenser
⑤ I_2(I -129) Trap ⑥ Trap with 1.5M -NaOH 25mL
⑦ Molecular sieve13X ⑧ Heating mantle
⑨ Trap with 1.5 M -NaOH 50mL

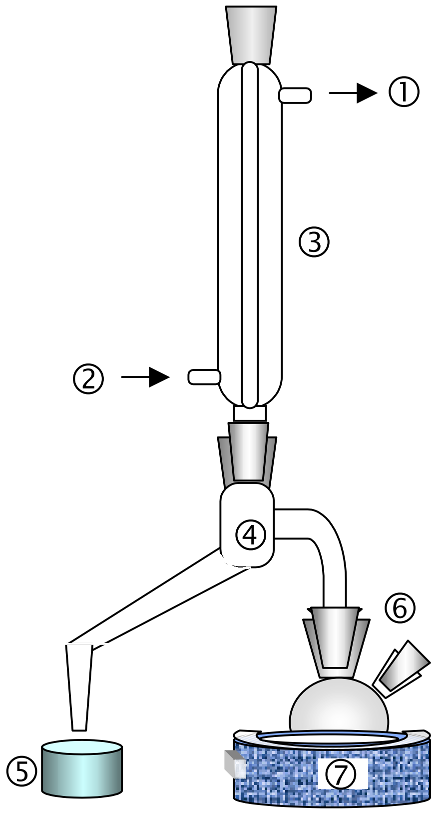

Fig. 2. Apparatus for ^{3}H recovery.

① Cooling water outlet
② Cooling water inlet
③ Cooling condenser
④ Distiller
⑤ Receiver
⑥ Round bottom flask
⑦ Heating mantle

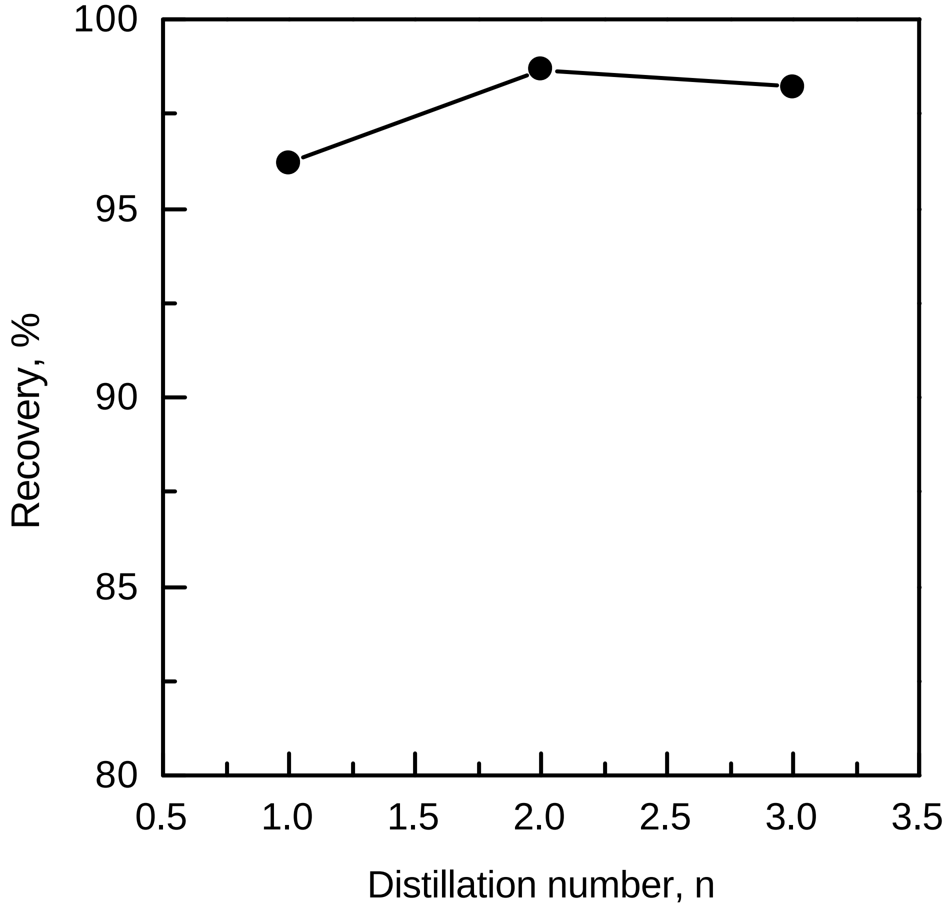

Fig. 3. Recovery behaviour of ^{3}H from simulated spent PWR fuel dissolver solution.

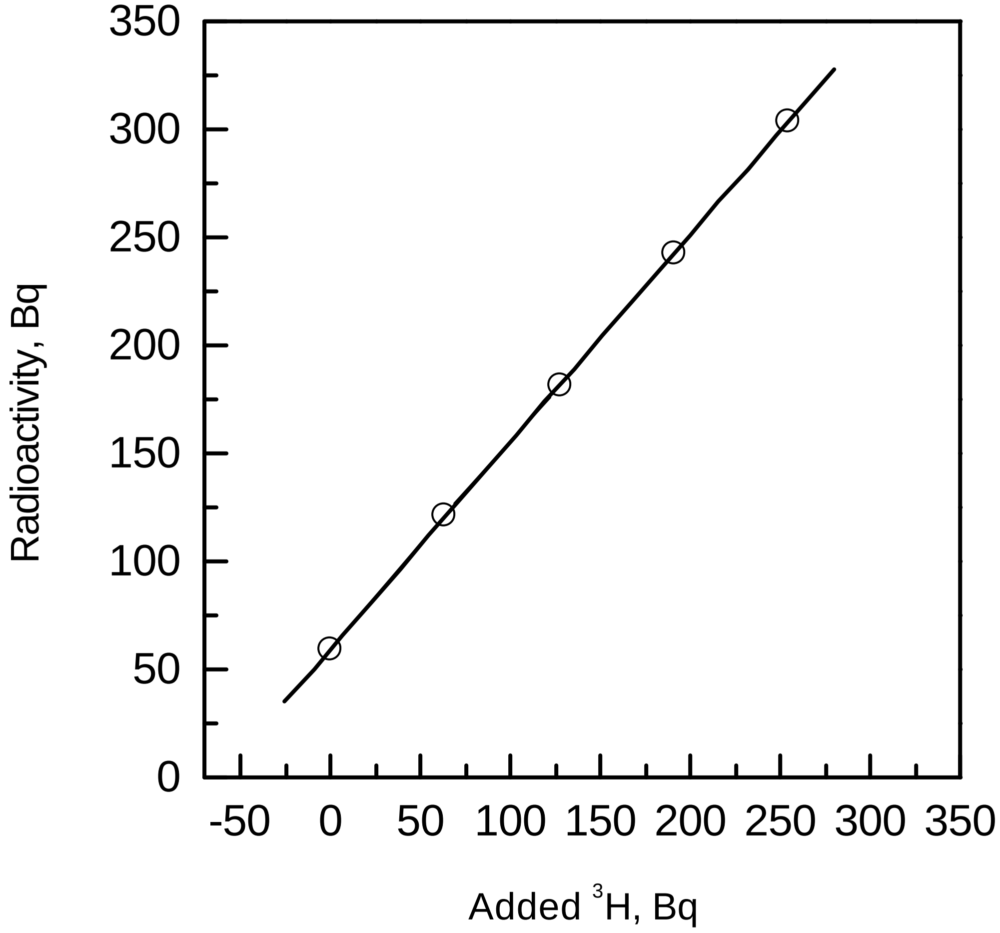

Fig. 4. Standard addition curve of tritium. R=0.9999, Standard deviation =0.4179. Y=59.2400+0.9595X

Fig. 1. Standard addition curve of tritium

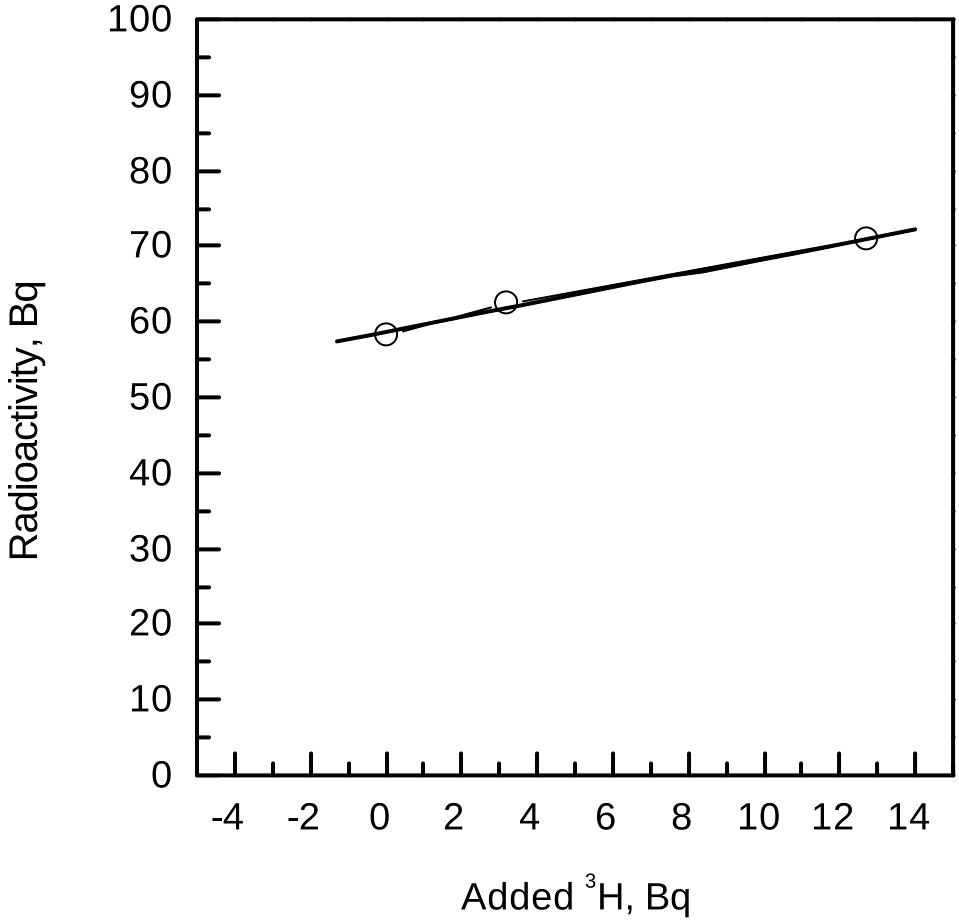

Fig. 5. Standard addition curve of tritium. R=0.9952,
Standard deviation =0.9002. Y=58.6496+0.9715X

Fig. 1. Standard addition curve of tritium

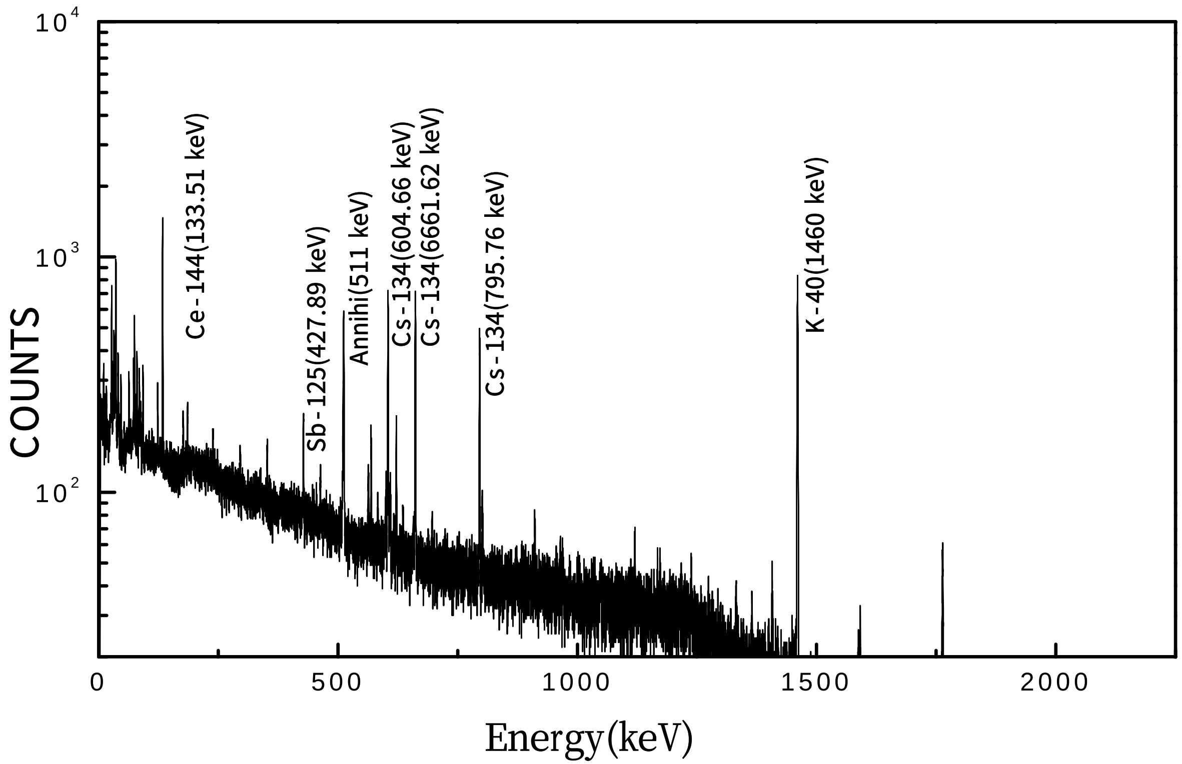

Fig. 6. Gamma spectrum detected in a distilled solution.