

비휘발성 핵종분석을 위한 방사성 폐기물 시료의 전처리 방법

표형열, 안홍주, 송병철, 지광용

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

nhypvo@kari.re.kr

국내 가압경수로 및 가압중수로 원전으로부터 발생된 중 저준위 방사성폐기물 내 주요핵종의 방사능을 평가하기 위해 방사 화학적 방법을 이용하여 주요핵종을 분석하였다. 이를 위하여 대표 시료채취, 분석시료 소분, 시료전처리, 개별핵종분리 및 방사능 측정 등 일련의 과정이 순차적으로 진행되었다. 이와 같은 과정 중 시료 용액 화 또는 핵종침출의 시료전처리는 핵종분리 과정에서 다른 핵종 또는 매질의 간섭으로 원활한 핵종분리가 이루어지지 않을 수 있기 때문에 시료유형 및 분석 대상핵종의 특성이 우선적으로 고려되어야 한다. 일반적으로 방사성물질 중 핵종분리를 위한 시료전처리 방법은 회화 법, 혼산 침출 법, 알칼리 용융 법, 극초단파 산분해법 및 Acid Digestion Bomb 등으로 구분하고 있지만, 시료의 형태 및 분석 대상핵종에 따라 소개된 방법이 선택적으로 적용되고 있다. 본 연구에서는 분석 대상핵종 침출 또는 시료용액화하고자 다양한 시료유형과 대상핵종 방사능 준위를 감안하여 혼산 침출 법(Leaching)과 극초단파 산분해법(Microwave Digestion)을 병행하여 적용하였다. 주로 회화된 잡 고체와 폐수지, 활성탄소, 농축폐액 및 슬러지는 혼합산 용액에서 극초단파 산 분해 처리하여 시료를 분해하였고, 시멘트 또는 파라핀 고화체 시료는 혼합산에서 가열하여 침출하는 방법을 적용하여 시료전처리 방법을 확립하였다.

- 시료유형별 시료전처리

1. 가연성 잡고체 (면류, 비닐류, 종이류, DAW)

가연성 잡고체는 시료 상태에 따라 수분이 다양하게 함유되어 있기 때문에 분석시료 일정량을 120 °C에서 6시간 건조하여 수분함량을 측정하였고, 고온로에서 200 ~ 400 °C에서 단계별로 승온한 후 최종적으로 450 °C에서 12시간 유지하여 시료를 회화하였다. 회분무게 0.1 ~ 0.3 g을 취한 후 TFM vessel에 넣고 질산 6 mL, 염산 3 mL, 그리고 불산 1 mL를 첨가하여 열판위에서 저온가열 후 극초단파 산 분해 처리로 시료를 완전 용액 화 하였다. 특히, 회화 및 시료용액화의 과정에서 분석 대상핵종 손실 확인 요인이 발생할 수 있으므로 대표적으로 휘발성이 강한 Re 표준용액을 회화과정 초기부터 시료에 합침하여 회수율을 측정하였다.

2. 활성탄

건조된 시료 0.1 g 정도를 취한 후 질산 12 mL, 과산화수소 2 mL의 혼산 용액을 TFM vessel에 넣고 열판 위에서 저온가열 후 극초단파 산분해 처리하여 시료를 용액화 하였다.

3. 폐수지(spent resin)

건조된 고방사능 수지는 질산 12 mL 용액에서 0.1 g을 취하여 TFM vessel에 넣고 저온가열 후 극초단파 산분해 처리하여 시료를 용액화 하였고, 저 방사능 수지는 5 ~ 6 g의 시료를 취하여 4 M 질산과 10 M 염산을 이용하여 수지에 붙어있는 분석대상핵종을 탈착 후 여과하여 용액을 농축하였다.

4. 제올라이트

건조시료 0.1 ~ 0.2 g과 질산 3 mL 및 불산 0.25 mL를 TFM vessel에 첨가하고 극초단파 산분해 처리하여 시료를 용액화 하였다.

5. 슬러지(원심분리기 및 침프)

건조시료 0.1 ~ 0.2 g을 염산 3 mL 및 불산 0.25 mL와 함께 TFM vessel에 첨가하고 극초단파 산분해 처리하여 시료를 용액화 하였다.

6. 시멘트 및 파라핀 고화체

5 ~ 6 g의 시료와 질산 10 mL 및 염산 20 mL의 혼합 산용액을 유리비커에 첨가하고 열판에서 저온 가열하여 분석 대상핵종을 침출하였다.

7. 농축폐액(CB)

시료 5 mL을 취한 후 질산 3 mL, 염산 2 mL 및 불산 1 mL를 TFM vessel에 첨가하고 극초단파 산분해 처리하여 시료를 용액화 하였다.

8. 폐필터

시료 0.1 ~ 0.5 g을 취하여 질산 6 mL와 염산 3 mL를 TFM vessel에 첨가하고 극초단파 산분해 처리하여 시료를 용액화 하였다.

Table 1. Acid mixture for acid digestion

Sample	sample weight (g)	Mixed acid (mL)	Final volume (ml)	Remark
DAW	ash, 0.1 ~ 0.3	HNO ₃ 6 HCl 3 HF 1	20	Re carrier: 3 mg Cross-vessel
Spent resin(H)	Dry, 0.1 ~ 0.25	HNO ₃ 12	20	Cross-vessel
Spent resin(L)	Dry, 5 ~ 6	4 M HCl 50 10 M HNO ₃ 50	20	Column
Sludge	Dry, 0.1 ~ 0.25	HNO ₃ 6 HCl 3 HF 1	20	Cross-vessel
CB	5ml (5 ~ 6 g)	HNO ₃ 3 HCl 2	20	Cross-vessel
Spent filter	0.1 ~ 0.5	HNO ₃ 10 HCl 15	20	Leaching
Cement	5 ~ 6	HNO ₃ 15 HCl 30	50	Leaching Centrifugation
Paraffin	5 ~ 6	HNO ₃ 10 HCl 20	50	Leaching Filtration

- 결 론

원자력 발전소에서 발생된 잡고체, 폐수지, 제올라이트, 활성탄, 농축폐액, 슬러지 등과 같은 방사성 폐기물 내 핵종을 방사 화학적으로 분석하기 위하여 밀폐형 극초단파 산분해법 또는 침출법을 적용하였다. 각 방법들은 유사성을 갖는 모의시료로 수회의 시행착오와 반복적인 실험으로 혼합산 비, 시료량, 산분해 온도조건 설정과 Re 표준물을 이용한 회수율 확인으로 핵종분석을 위한 시료전처리 방법을 확립하였고, 이를 실제 동종 시료에 적용하였다.

- Reference

1. Alexandra Tsolakidou, Jaume Buxeda I Garrigos, Vassilis Kilikoglou, *Analytica Chimica Acta* 474 (2002) 177-188.
2. D.N. Papadopoulou, G.A. Zachariadis, A.N. Anthemidis, N.C. Tsirlganis, J.A. Stratis, *Analytica Chimica Acta* 505 (2004) 173-181.
3. Paul J. Lamothe, Terry L. Fries, and Jerry J. Consul, *Anal. Chem.*, Vol. 54 (1986) 1881p.
4. A. Agazzi and C. Pirolab, *Microchem. J.*, Vol. 67, (2000) 337p.