

## 농축폐액 및 폐수지 시멘트고화체내 $^{129}\text{I}$ 분석

박순달, 김정석, 최계천, 한선호, 지광용  
한국원자력연구원, 대전시 유성구 덕진동 150 번지

[nsdpark@kaeri.re.kr](mailto:nsdpark@kaeri.re.kr)

콘크리트 구조물은 100년 이상의 내구성이 있으며 방사선에 의해 전혀 영향을 받지 않고, 시멘트 경화체가 방사선에 대한 차폐효과를 갖고 있다. 따라서 중저준위방사성폐기물의 저장, 운반 및 처분시 방사성핵종의 비산 및 누설이 일어나지 않도록 방사성폐기물을 시멘트 고화 처리하여 처분하고 있다. 시멘트고화는 주로 원자력발전소의 냉각재관련 계통에서 발생된 폐기물인 농축폐액 및 폐수지의 고화처리에 이용되고 있다.

중저준위방사성폐기물 처분과 관련된 장기위험성에서 장수명 핵종은 매우 중요한 의미를 갖는다.  $^{129}\text{I}$ 는 핵분열과정에서 생성된 휘발성핵종중 반감기  $1.57 \times 10^7$ 년의 초장수명 핵종이다.  $^{129}\text{I}$ 는  $^{129}\text{In}$  계열의 붕괴로 생성되며 가압경수로형 원자로에서  $^{129}\text{I}$ 의 생성율은 0.8% 정도이다. 핵분열과정에서 생성된  $^{129}\text{I}$ 의 대부분은 조사핵연료내에 존재하지만 일부  $^{129}\text{I}$ 가 방출되어 여러 가지형태의 폐기물에 분포된다. 수환경으로 방출된 요오드의 형태는 주로 비휘발성인 iodide이다.

$^{129}\text{I}$ 는 약한 베타입자( $E_{\max}=0.189$  MeV), 약한 감마선(39.6 keV) 및 엑스선을 방출한다. 따라서 중저준위방사성폐기물의  $^{129}\text{I}$  측정에는 대부분 대표 시료의 실험실 분석을 요구한다.  $^{129}\text{I}$ 의 분석방법에는 Accelerator Mass Spectrometry(AMS), Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry(ICP-MS), Neutron Activation Analysis(NAA), Liquid Scintillation Counting(LSC),  $\gamma$ -spectrometry 및 Gas Proportional Counting(GPC)와 같은 여러 가지 방법이 있다. 측정방법의 선택은 실험실에서 이용 가능한 시설, 장비, 요구되는 분석한계 및 분석경비 등을 고려해야 한다.

본 연구에서는 시멘트고화체내  $^{129}\text{I}$  분석을 위해 고가의 장비를 사용하지 않는 AgI 침전 분리-GPC법을 채택하였다. 모의 시멘트고화체 제조에는 사용하지 않은 포트랜드시멘트와 음이온교환수지(AG 1X2, 50-100 mesh, chloride form)를 사용하였다. Iodide의 회수율측정에 미치는 다른 음이온의 영향을 조사하기 위해 사용하지 않은 시멘트에 음이온교환수지와 요오드 운반체를 가하여 시료준비 조건에 따른 AgI의 화학회수율을 측정하였다.

시멘트고화체 시료는 총 21개로 이중 15개는 농축폐액고화체이었고 6개는 폐수지고화체였다. 50 mL의 플라스틱 비커 4개에 각각 시멘트고화체 시료 약 5 g, 음이온교환수지(AG 1X2, 50-100 mesh, chloride form) 2.5 g 및 KI(50 mg I<sup>-</sup>/mL) 용액 0.2 mL를 가하였다. 여기에 pH 9의 완충용액 10 mL를 가하고 12 시간 이상 이온교환수지와 접촉시켜 iodide를 이온교환수지에 흡착시켰다. 이 수지를 50 mL 플라스틱 칼럼에 옮기고 50 mL의 증류수로 2회 세척하였다. 이온교환수지에 흡착된 iodide를 4% NaOCl로 IO<sub>3</sub><sup>-</sup>로 산화, 용출시켰다. 이것을 진한 질산 및 hydroxylammonium chloride(NH<sub>2</sub>OH-HCl)를 사용하여 I<sub>2</sub>로 환원시켜 CCl<sub>4</sub>로 추출하였다. 수집한 CCl<sub>4</sub>를 0.1 M-NaHSO<sub>3</sub> 5 mL를 가하여 3 분간 역추출하였다. 수층에 진한 질산 0.5 mL, 0.1 M-AgNO<sub>3</sub> 2 mL를 차례로 가하여 연두색의 AgI 침전을 생성시켰다. 이 침전을 회수, 정제, 건조 후 무게 달아 화학회수율을 측정하고 GPC로 베타 계수를 측정하여  $^{129}\text{I}$ 의 농도를 구하였다.

AgI에 의한 I분리는 AgI가 다른 할로젠 원소(X)의 은침전물(AgX)에 비해 용해도가 낮다는 것을 이용한다. 본 실험에서 AgI 침전 생성시 방해할 수 있는 음이온은 Cl<sup>-</sup>와 S<sup>2-</sup>이다. Cl<sup>-</sup>는 CCl<sub>4</sub> 추출과정에서 유입될 수 있으며 S<sup>2-</sup>는 과량의 NaHSO<sub>3</sub> 사용에 의해 남아 있는 것이다. 본 실험조건에서는 0.1 M-NaHSO<sub>3</sub> 5 mL 사용시 AgI 침전물에서 S 성분이 검출되지 않았다. 그러나 0.5 M-NaHSO<sub>3</sub> 5 mL 사용시 AgI 침전에서 높은 농도의 S가 검출되었다. 또한 최종 침전물 생성시 진한질산을 0.2 mL 가했을 때 생성된 AgI의 회수율이 이론값보다 높았다. 확인 결과 이것은

AgCl의 공침에 의한 것이었다. 따라서 추출한 CCl<sub>4</sub>를 묽은 질산(95:5) 10 mL로 충분히 세척하고 세척된 용액에서 AgCl 침전 생성을 확인해야 한다. 최종 AgI 침전물 생성시 진한 질산 0.5 mL를 가하여 염소 및 황의 방해로 방지 할 수 있었다. 침전에 의한 순수한 I<sup>-</sup>의 분리는 염의 용해도적 을 이용하므로 pH 조절이 매우 중요하다.

음이온교환수지에 대한 iodide의 흡착은 중성 혹은 약알칼리성(pH 7-8)의 범위에서 가장 효과적이다. 이 조건은 가압경수로형 원자로에서 발생된 냉각재 폐기물 시료의 pH와 비슷하다. 본 연구에서 사용한 시멘트고화체의 평균무게는 약 5 g이었으며 AgI의 화학적 회수율은 약 70%였다. 시멘트 고화체 시료는 총 21개 분석하였다. 21개시료중 2개의 농축폐액 고화체시료에서 Minimum detectable activity(MDA) 보다 약간 높은 농도의 <sup>129</sup>I가 검출되었다. 분석한 21개 시료 전체의 평균 MDA는 0.088 Bq/g, 표준편차 0.029 Bq/g이었으며 시료의 평균측정값은 각각 0.071 Bq/g, 표준편차 0.049 Bq/g이었다. 저준위폐기물의 <sup>129</sup>I 농도는  $1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-2}$  pCi/g으로 분포 범위가 매우 넓은 것으로 보고되어 있다. 미국 10CFR61의 규정에 의하면 중저준위방사성폐기물내 <sup>129</sup>I의 측정법은 Minimum Detectable Concentration(MDC) 약 30 Bq/g(0.8 nCi/g) 이하, 검출방법 GPC, 회수율 측정법 중량법으로 각각 기술되어 있다. ICP-MS 및 AMS의 MDC가 각각 약 0.004 Bq/g(10E-4 nCi/g), 약 0.00004 Bq/g(10E-6 nCi/g)으로 보고되어 있다. 이와 같은 고성능의 ICP-MS 혹은 AMS로 초극미량의 <sup>129</sup>I를 검출하기 위해서는 시료 준비절차가 매우 복잡하고 장시간이 소요되며 고가의 장비를 사용해야 하므로 중저준위방사성폐기물의 일상분석에 적용하기 어렵다. 따라서 본 연구에서 확립한 AgI분리-GPC 측정법은 규정에서 요구한 중저준위방사성폐기물 내 <sup>129</sup>I 분석한계를 만족하며 일상분석에 적용성이 좋은 것으로 사료된다.

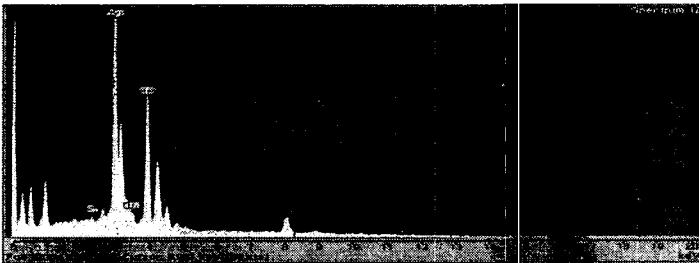


Fig. 1. Energy dispersive x-ray spectrum for the pure AgI precipitate which was processed to remove interfering anions.