

## 질산 및 Ce(IV)에 의한 방사성 오염금속의 제염

안성진, 홍대석, 지영용, 배상민, 손종식

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

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

### 1. 서론

방사성오염 금속 폐기물을 제염하는 방법에는 여러 가지 방법이 있는데 그 중에서 가장 많이 사용되는 방법이 주로 모래분사, 드라이아이스 분사, 고압수 분사, 초음파 제염과 같은 물리적 방법, 산/알칼리, 산화/환원제등을 이용하는 화학적 방법, 및 전기분해를 이용하는 전기화학적 방법 등이다. 물리적 방법에 의해서 금속 표면에 묻어있는 오염물질을 제거할 수가 있고, 산과 알칼리를 이용하여 표면의 오염을 화학적으로 용해시켜 제염을 할 수가 있다. 오염물질이 금속 내부까지 침투되었을 경우는 산화 환원제를 이용하여 금속표면을 일부 용해시켜서 제염을 할 수가 있으며 전기분해를 이용하여 전기화학적으로 금속표면을 용해시킴으로써 더 효과적으로 제염을 할 수가 있다.

금속표면이 약하게 오염되었을 경우 화학적인 제염방법에서 질산이나 황산 등의 무기산에 의해서 제염을 할 수가 있으며, 산에 의해서 효과적으로 제염이 되지 않을 경우 산화제로서 Cerium을 사용하기도 한다. Cerium은  $Ce^{4+}$  (ceric)와  $Ce^{3+}$  (cerous)의 2가지 안정한 원자가상태를 가지고 있다. Ceric ion은 강력한 산화제이며 금속 및 산화층을 다음과 같이 용해시킨다.



한국원자력연구원에서 발생된 방사성오염 금속폐기물을 제염하기 위한 목적으로 오염된 STS 304L 금속시료에 대한 제염실험을 하였다. STS 304L 시료를 방사성 농축액에 오염시키고 이 금속의 제염을 위하여 질산을 제염제로 하고 용액의 온도를 변화시켜서 금속제염에 대한 온도의 영향을 시험하였으며, 산화제로서 금속의 산화층과 금속 모재를 산화시킬 수 있는  $Ce^{4+}$ 의 질산용액을 선택하여 그 영향을 시험하였다. 시험결과 예상과 같이 용액의 온도가 제염효과에 많은 영향을 주었으며,  $Ce^{4+}$ 에 의해서는 시간이 어느 정도 지난 후에 그 효과가 나타났다.

### 2. 실험 및 결과

제염제로는 질산과  $Ce(NO_3)_4$ 를 사용하였다. 질산에 의한 제염에서의 오염도는 Thermo Electron Corporation사의 Type 6-90 Portable Counter(back ground : 27cps)를 이용하여 cps(count per second)단위로 측정하였고,  $Ce(NO_3)_4$ 산화제를 이용한 제염에서는 HPGe  $\gamma$ -Spectrometer를 이용하여 Bq/g 단위로 오염도를 측정하였다.

금속 시험시편은 넓이  $5 \times 5 \text{cm}^2$ , 두께 1.5mm, 무게 30g의 STS 304L Plate를 방사능 농도가  $8 \times 10^3$  Bq/ml 인 농축액에 6개월간 오염시켜서 만들었다. 온도에 따른 제염효과를 관찰하기 위하여 각각 0.02N  $HNO_3$  300ml에 오염된 시편을 넣고 온도를 각각 상온,  $40^\circ\text{C}$ ,  $60^\circ\text{C}$ ,  $80^\circ\text{C}$ 로 변화시켰다. 또  $Ce^{4+}$ 의 제염효과를 관찰하기 위하여 각각 300ml의 0.02N  $HNO_3$ 용액과 0.02N  $HNO_3$ 용액에 0.02N  $Ce(NO_3)_4$ 를 혼합시켜서 만든 용액에 오염시편을 넣어 각각 5시간 간격으로 오염도를 측정하였다.

방사성 오염금속의 제염은 금속의 표면오염과 내부오염 등 금속표면에서의 오염형태에 따라서 많은 영향을 받기 때문에 똑같은 조건에서 시편들을 오염시켰더라도 서로 다른 오염시편을 가지고 정확한 비교는 할 수가 없다. 그러나 대략적인 경향은 알 수가 있었다.

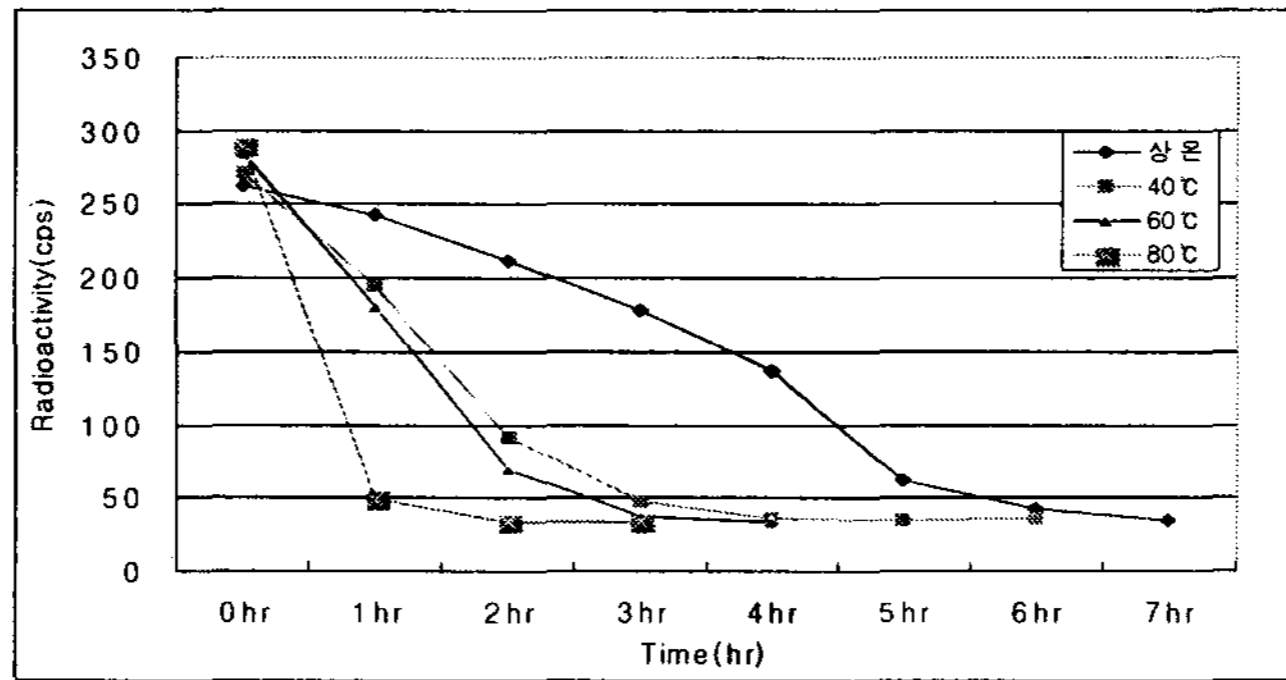


그림 1. 0.02N HNO<sub>3</sub> 용액에 의한 STS 304L의 제염에서 온도의 영향

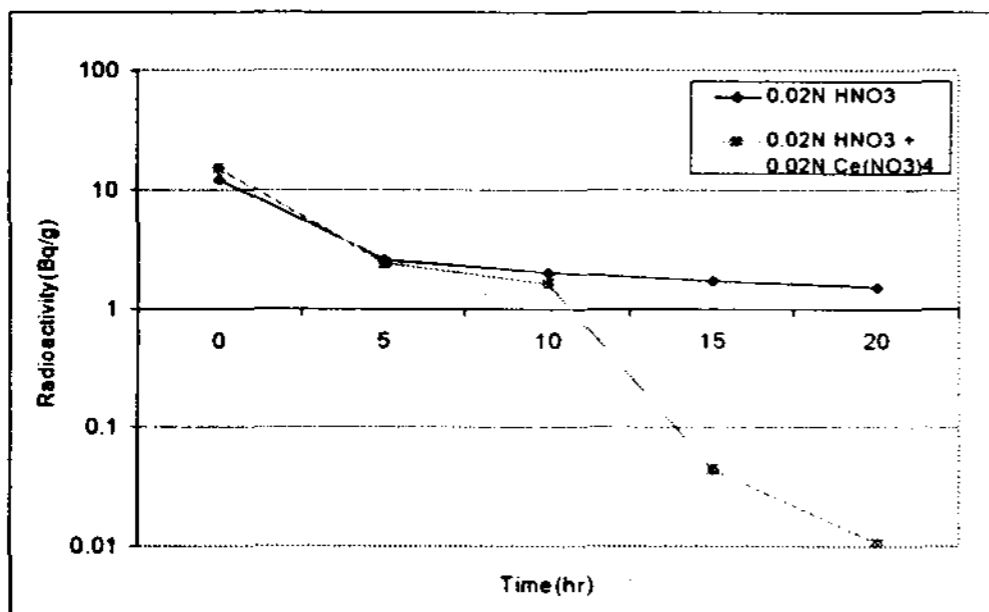


그림 2. 질산 및 Ce(IV)에 의한 Co-60의 제염

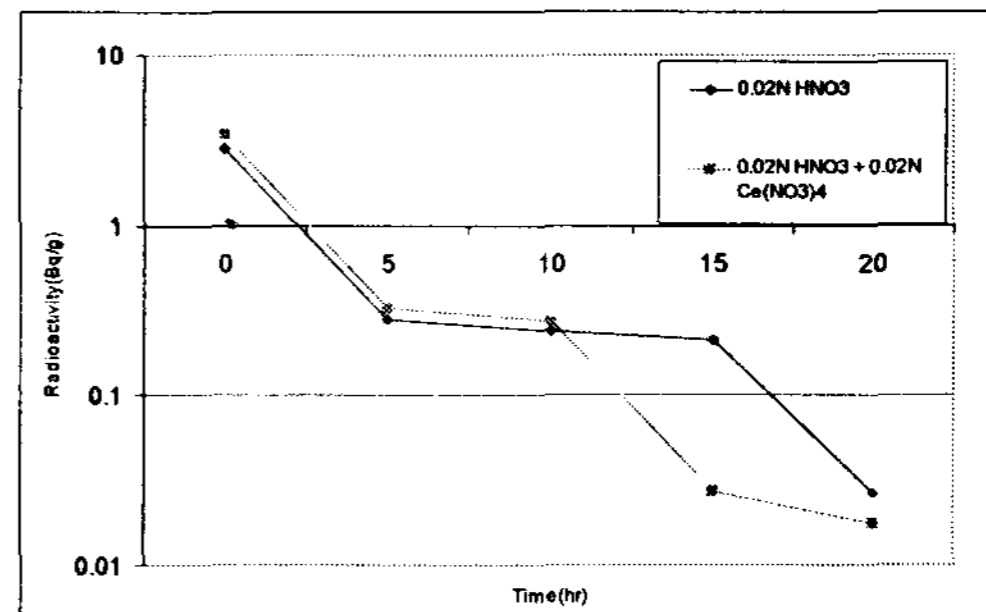


그림 3. 질산 및 Ce(IV)에 의한 Cs-137의 제염

그림 1에서와 같이 0.02N HNO<sub>3</sub> 용액의 온도를 변화시켰을 경우 온도 증가에 따라 표면오염이 급속히 제염됨을 알 수가 있으며 80°C에서는 1시간 내에 50cps 이하로 제염이 되었다. 40°C와 60°C에서는 3시간 후에 상온에서는 6시간 후에 50cps 이하로 제염이 됨을 알 수가 있었다. 그림 2 및 그림 3에서 보는 바와 같이 Ce<sup>4+</sup>에 의한 제염의 경우 Co-60과 Cs-137 핵종 모두 15시간 이후에 0.1Bq/g 이하까지 제염이 되었으나 질산용액에 의한 제염의 경우는 15시간의 제염기간에도 Co-60과 Cs-137 핵종 모두 0.1Bq/g 이하로 제염이 되지 않았다. 그래서 15시간의 제염 후에 질산의 농도를 0.1N로 증가시키고 Ce(NO<sub>3</sub>)<sub>4</sub>의 농도를 0.08N로 증가시켜서 5시간 동안(20시간째의 제염부분) 제염을 하였다. 그 결과 질산용액에 의한 제염에서 Co-60 핵종의 경우 용액의 농도를 증가시킨 제염 20시간째에서도 0.1Bq/g이하로 제염이 되지 않았으나 Cs-137핵종의 경우는 0.1Bq/g이하로 제염이 되었다. Ce(NO<sub>3</sub>)<sub>4</sub>에 의한 제염에서는 Co-60과 Cs-137 핵종 모두 제염이 잘 되었다.

### 3. 결론

STS 304L Plate의 제염에서 제염온도의 제염효과에 미치는 효과가 매우 크게 나타났으며, 산화력이 강한 Ce<sup>4+</sup>에 의한 제염효과에 있어서도 좋은 결과가 나타났다, 이와 같은 결과는 현재 연구원에 저장중인 금속폐기물의 제염 시 이용될 수 있을 것이다. 스테인레스 금속폐기물의 제염 시 제염온도를 적어도 40°C 또는 60°C이상 올리는 것이 좋을 것으로 본다. 질산에 의해서 제염이 어려울 경우 Cerium을 이용하면 더욱 효과적일 수가 있다.