

방사성폐기물 핵종재고량 평가를 위한 제염지 전처리

최광순, 표형열, 안홍주, 박용준, 송규석
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
nkschoi@kaeri.re.kr

1. 서론

한국원자력연구원은 2008년까지 발생된 것을 기준으로 중·저준위방사성폐기물 약 7000 드럼을 임시 보관하여 관리하고 있다. 경주시 양북면 봉길리에 건설 중인 방사성폐기물 처분시설이 준공되면 한국방사성폐기물관리공단은 4곳의 원자력발전소나 우리 연구원에서 임시로 보관 중인 방사성폐기물 드럼을 인수받아 보관 및 관리하게 된다. 방사성폐기물 드럼을 인수할 때 방폐공단은 교과부 고시 제2009-37호 '중·저준위 방사성폐기물 인도규정 고시'에서 정하는 기준과 공단 자체 인수기준의 적합성을 의뢰기관에 요구하였다.

^3H , ^{14}C , ^{55}Fe , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{90}Sr , ^{94}Nb , ^{99}Tc , ^{129}I , ^{137}Cs , ^{144}Ce 및 전알파와 같은 14개 핵종의 농도 규명을 교과부 고시에서 요구하고 있다. 고체 시료에 존재하는 비휘발성핵종 (^{55}Fe , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{90}Sr , ^{94}Nb , ^{99}Tc , ^{137}Cs , ^{144}Ce 및 전알파 핵종)의 방사능세기를 측정하기 위하여 먼저 용액으로 만들어야 한다. 전알파핵종을 제외한 비휘발성핵종 각각은 용액으로 만든 다음 감마를 측정하고 일정 양을 취하여 각각의 핵종을 순차적으로 분리한 후에 방사능계측장비로 측정한다.

원자력발전소는 초창기에 제염지, 비닐, 플라스틱, 면류와 같은 가연성 폐기물을 크게 잡고체로 분류하여 혼합된 상태로 보관하여 왔으나 최근에 세분하여 각각을 분리하여 보관한다. 따라서 기존에 수립한 잡고체의 전처리방법을 세분하여 확립할 필요성이 대두되었다. 또한 우리 연구원도 혼합된 상태로 드럼에 보관하였던 잡고체를 개봉하여 잡고체 종류별로 세분한 다음 재포장한다.

따라서 본 연구에서는 잡고체 중 제염지의 전처리 방법으로 회화 및 침출방법을 조사하였다. 방사성폐기물인도규정에서 제시한 핵종의 처분농도 제한치를 충족시키기 위하여 제염지 시료는 수십 그램을 취급하여 용액으로 만들어야 한다. 농축효과를 얻기 위하여 회화 방법을 적용하였다. 회화 온도는 200-250-300-350-400-450 °C로 순차

적으로 증가하여 각각의 온도에서 일정시간 동안 유지하였다. 각각의 온도에서 일정시간 동안 온도를 유지하지 않으면 그 다음 온도에서 회화할 때 그을음이 발생하거나 화염이 발생하여 회화가 잘 되지 않으므로 각각의 잡고체 시료에 대한 회화 시간을 확립하여야 하며, 먼저 제염지에 대한 전처리 방법을 확립하고자 하였다. 제염지 한장의 무게가 약 7 그램으로 부피가 크지 않고 또한 용액으로 만드는데 소요되는 시간도 짧으므로 표준 용액 일정 양을 점적하여 건조한 다음 침출방법도 실험하였다.

2. 본론

2.1 실험

회화 및 침출방법으로 회수율을 측정하기 위하여 사용하지 않은 제염지 5장 약 34 g을 800 mL 용량의 비커에 넣고 Co, Cs, Fe, Nb, Ni, Re 및 Sr 용액을 비커 벽에 닿지 않게 가하였다. 회화는 비커를 전기로 넣고 순차적으로 온도를 상승하였다. 온도는 분당 5-10 °C로 상승하도록 조절하였으며, 목적 온도에 도달하면 4시간 동안 회화하였다. 최종적으로 450 °C에서 3시간 회화시킨 다음 실온에서 무게를 측정하여 시료 농축비를 계산하였다.

약 0.6 g의 회분을 마이크로파 용해장치 용기로 옮기고 질산-6, 염산-3, HF-1 mL을 가하여 가열판에서 15분 동안 미리 반응시키고 식은 다음, 마이크로파 용해장치로 아래 표 1의 조건처럼 작동하여 용액으로 제조하였다. 용해 용액을 눈금이 있는 50 mL 용량의 원심분리 튜브로 옮기고 1 M 질산으로 20 mL 눈금까지 채웠다. 불용성 잔류물이 있으므로 여과한 다음, Cs는 AAS로 나머지 원소는 ICP-AES로 측정하여 회수율을 계산하였다.

침출방법은 전기로를 사용하여 120 °C에서 시료를 건조한 다음, 혼합산 (1 M HNO₃-2.5 M HCl) 500 mL을 비커에 넣어 제염지가 용액에 잠긴 상태로 가열판 위에서 2시간 가열하여 방사성

핵종원소를 침출하였다[1]. 용액의 최종부피는 500 mL로 맞춘 다음, AAS와 ICP-AES로 측정하여 회수율을 계산하였다.

Table 1. Operation condition of microwave digestion system.

Step	Power (W)	Time (min)
1	290	4
2	400	10
3	300	1
4	250	10

2.2 결과 및 논의

새 제염지 5장을 3개의 각각의 비커에 넣고 무게를 측정한 결과 34.24±0.05 g이었으며, 450 °C에서 회화한 다음 측정된 회분의 무게는 0.59±0.00 g이었다. 즉 이 제염지를 회화할 경우 시료 농축비는 58.0이다. 따라서 이 시료의 회분 0.10 g은 제염지 5.80 g에 해당되므로 소량의 회분을 취하여 사용하여도 많은 양의 제염지를 사용한 것과 같은 농축효과를 얻을 수 있다. 회화한 다음 회분의 무게는 시료마다 다르므로 모든 시료 각각에 대하여 시료 농축비를 계산하여야 한다.

시료의 경우 수분함량을 측정하기 위하여 120 °C에서 6시간 동안 가열한 다음 무게를 측정하고 200 °C로 올리나 이 시료는 수분함량을 측정할 필요가 없으므로 200 °C부터 시작하였다. 200 °C부터 50 °C씩 단계적으로 온도를 상승하여 각각의 온도에서 4시간씩 회화할 때 그을음이나 화염이 발생하지 않고 회화가 잘되었다. 얻은 회분은 균질하게 되도록 비커에서 유리막대로 분쇄하면서 섞어주었다. 회화가 전처리 과정 중에서 시간이 가장 많이 소요되는 단계이다.

회화한 제염지를 마이크로파 용해장치로 용해한 다음 용액에 있는 금속 이온을 ICP-AES 및 AAS로 측정한 결과 표 2와 같이 Cs, Fe 및 Sr을 제외한 4개 원소 모두 회수율은 90% 이상이었다. Fe과 Sr의 낮은 회수율과 표준편차가 큰 것은 첨가한 양 (100 µg)에 견주어 제염지 34.24 그램에 각각 2138 및 145 µg로 과량으로 존재하기 때문으로 사료된다. Cs의 회수율이 낮은 원인은 450 °C에서 휘발성 때문인지를[2] 확인하기 위하여 최대온도를 350 및 400 °C로 낮추어 실험할 예정이다. 제염지 성분은 Ca, Si, Mg, Na, Fe, Sr, Zn

순서로 존재하였다.

침출방법으로 회수율을 측정한 결과 표 2에서 알 수 있듯이 Cs은 정량적으로 회수되었다. 그러나 침출할 때 HF를 사용하지 않아 Nb의 회수율이 35.0%로 감소하였다. 따라서 불산을 사용할 수는 TEFLON PFA (perfluoroalkoxy) 재질의 비커를 사용하여 HF-HNO₃-HCl의 혼합산으로 침출하는 방법이 효과적인 전처리방법으로 사료된다.

Table 2. Recovery of elements in paper towel.

	회수율 (%)						
	Co	Cs	Fe	Nb	Ni	Sr	Re
1	98.3	30.0	64.7	97.5	94.8	85.4	92.3
SD	2.1	0.0	32.8	7.6	4.4	15.2	2.4
2	88.0	97.8	88.2	35.0	86.1	87.2	87.8
SD	3.6	2.6	12.9	7.6	3.9	2.3	5.3

1 : 회화, 2 : 침출

3. 결론

우리 연구원이 보유하고 있는 중·저준위 방사성폐기물을 경주 처분시설로 이송하기 위한 준비의 일환으로 제염지에 대한 전처리 방법을 확립하였다. 참고체 중 제염지에 대한 전처리 방법으로 회화방법보다 침출방법이 Cs의 휘발과 소요시간을 고려할 때 더 양호한 방법으로 확인되었다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 출연금 주요사업의 일환으로 수행하였음.

5. 참고문헌

- [1] Method of Air Sampling and Analysis, James P. Lodge, Jr. Editor.
- [2] C. W. Sill, Volatility of cesium and strontium from a synthetic basalt, Nucl. & Chem. Waste Manage., 8(2), 97-105, 1988.