

테크네튬 측정을 위한 마이크로파 용해장치를 이용한 칼슘필터 용해

최광순, 박양순, 손세철, 박용준, 송규석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

nkschoi@kaeri.re.kr

1. 서론

파이로 공정은 사용후핵연료에 존재하는 우라늄과 플루토늄을 핵분열생성물로부터 개별분리를 할 수 없으므로 핵투명성 관점에서 사용후핵연료를 재활용하기 위한 방법으로 큰 장점이 있다. 따라서 우리나라는 사용후핵연료를 이용하기 위한 방법으로 이 공정에 대한 연구를 집중하고 있다. 펠렛 형태의 사용후핵연료를 가공하기 쉬운 분말 형태로 전환하기 위하여 고온 voloxidation 공정을 수행할 때 방사능이 높은 세슘, 루비듐, 카드뮴, 루테튬, ^{14}C , 테크네튬 및 요오드와 같은 휘발성핵종은 약 1200 °C의 높은 공정온도로 인하여 휘발하게 된다. 따라서 휘발성핵종을 포집하기 위하여 fly ash 필터, 칼슘필터 및 AgX 필터 순서로 포집 시스템을 구성하여 필터 종류별로 방출핵종의 포집 성능 실험을 수행하고 있다. 포집 시스템의 가운데 위치한 칼슘필터는 테크네튬뿐만 아니라 루테튬과 ^{14}C 을 포집하기 위한 필터로 결로를 방지하기 위하여 약 600 °C를 유지한 상태에서 핵종을 포집한다. 칼슘필터에 흡착된 테크네튬의 방사능 세기를 계측하기 위하여 먼저 용액으로 만든 다음, 용액 중에 존재하는 테크네튬을 순수하게 분리하여 한다. 따라서 본 연구에서는 마이크로파 용해장치를 사용하여 칼슘필터를 용해하기 위한 실험을 수행하였다.

2. 본론

2.1 실험

사용한 칼슘필터는 한국원자력연구원에서 제조하였으며 [1], 그림 1과 같은 모양의 필터를 용해할 목적으로 표면적을 증가하기 위하여 막자사발로 곱게 분쇄한 다음 사용하였다. Tetrafluoromethaxil (TFM) 재질의 용기에 시료 약 0.1 그램을 넣고 염산, 질산 및 불산을 가한 다음 280 °C의 높은 온도에서 작동이 가능한 nova rotor를 사용하여 마이크로파 용해장치로 용해상태를 실험하였다. 시료와 혼합산을 흔들어 준 다음 가열판

에서 15분 동안 미리 반응시키지 않고 바로 마이크로파 용해장치로 아래 조건처럼 작동하여 용액으로 제조하였다. 즉 실온에서 250 °C까지 30분 동안 천천히 상승시키고 60분 동안 장비를 작동하였다. 작동 후 휘발성 원소의 휘발을 방지하기 위하여 반응용기 내부의 온도를 실온으로 냉각할 목적으로 팬을 50분 동안 작동하였다. 불용성 잔류물이 존재할 경우 분리하기 위하여 용해 용액을 눈금이 있는 50 mL 용량의 원심분리 튜브로 옮겼다. 원심분리기로 분리한 다음 용액을 새로운 원심분리 튜브로 옮기고 증류수로 20 mL 눈금까지 채웠다. 용액 중에 존재하는 성분원소를 ICP-AES로 측정하였으며, 필터의 화학물 구조를 알기 위하여 분말 상태로 XRD를 측정하였다.

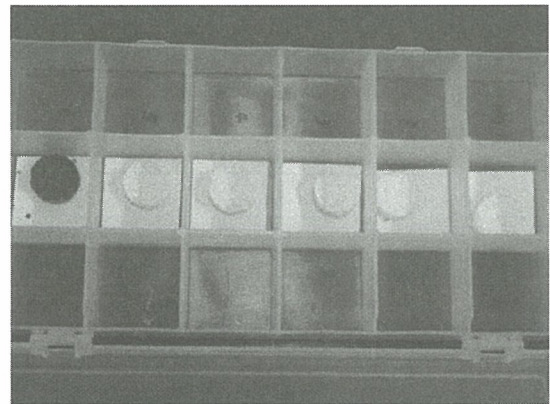


Fig. 1. Photograph of calcium filter.

2.2 결과 및 논의

칼슘필터를 XRD로 측정한 결과 그림 2와 같이 MgAl_2O_4 , CaMgSiO_4 및 $\text{Ca}(\text{ReO}_4)_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 의 3개 화학물의 피크가 관측되었다. 한편 시료 0.1 그램에 염산 10 mL, 질산 4 mL을 가하고 불산 양을 0.1, 0.25 및 0.5 mL로 변화시키면서 마이크로파 용해장치를 작동하였다. 그 결과 불산의 양이 증가할수록 불용성 잔류물의 양도 증가하였다. 용해 용액에 존재하는 성분원소를 ICP-AES로 측정하고

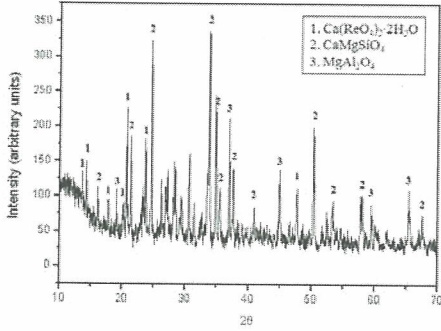


Fig. 2. XRD patterns of calcium filter.

표 1에 요약하였다. 그 결과 불산의 양이 많으면 용해된 알루미늄의 양은 0.1%이므로 용해되었을 때 측정값인 6.4%와 견주어 약 64배 감소하는 것으로 판단하여 MgAl₂O₄가 가장 용해되지 않는 것으로 사료된다. 왜냐하면 XRD 측정결과 알루미늄은 MgAl₂O₄, CaMgSiO₄ 및 Ca(ReO₄)₂·H₂O 3종류의 화합물 중 MgAl₂O₄에만 존재하기 때문이다.

Table 1. Analytical results of calcium filter depending on amount of HF.

	1	2	3	4
	용해	불용 잔류물 소	불용 잔류물 중	불용 잔류물 대
Al (%)	6.4	5.5	4.11	0.1
Ca (%)	18.4	16.4	17.8	13.3
Mg (%)	13.8	13.0	12.6	3.7
Re (%)	10.4	10.3	10.4	8.8
Si (%)	11.3	10.8	10.7	9.8

1. HCl 10 mL, HNO₃ 4 mL, HF 0.1 mL
2. HCl 10 mL, HNO₃ 4 mL, HF 0.25 mL
3. HCl 10 mL, HNO₃ 4 mL, HF 0.5 mL
4. HCl 10 mL, HNO₃ 2.5 mL, HF 2 mL

또한 레늄과 규소의 측정값은 용해되었을 때 각각 10.4와 11.3%이었으나 불용성 잔류물이 최대일 경우 8.8과 9.8%로 크게 감소하지 않았다. 한편 레늄과 규소는 각각 Ca(ReO₄)₂·H₂O와 CaMgSiO₄의 화합물에서만 존재하므로 이 두 화합물은 250 °C에서 용해할 때 불산의 영향을 크게 받지 않는 것으로 사료된다. 한편 불산이 과량으로 존재할 경우 용해된 마그네슘의 백분율은 용해되었을 때

를 기준으로 26.8%만 용해되었다. XRD 결과에 의하면 칼슘필터는 Ca(ReO₄)₂·H₂O, MgAl₂O₄ 및 CaMgSiO₄ 3종류의 화합물로 구성되어 있으며, 레늄, 알루미늄 및 규소는 각각 Ca(ReO₄)₂·H₂O, MgAl₂O₄, CaMgSiO₄의 화합물에만 존재하므로 ICP-AES의 규소 측정 결과로부터 CaMgSiO₄는 64.3%, 알루미늄 측정결과로부터 MgAl₂O₄는 16.4% 그리고 레늄 측정결과로부터 Ca(ReO₄)₂·H₂O는 16.1% 비율로 존재하는 것으로 예상하며 전체 백분율 합은 96.8%이므로 신뢰할 만한 결과로 판단된다.

불산의 양이 증가하면 필터의 용해도가 감소하므로 불산이 과량일 때 생성된 불용성 잔류물의 구조를 XRD로 확인하기 위하여 시료 0.2 그램과 질산과 염산의 양은 각각 10 mL과 2.5 mL이고 불산의 양을 2 mL 가한 다음, 마이크로파 용해장치를 작동하였다. 불용성 잔류물을 용액으로부터 원심분리기로 분리하고 침전물을 증류수로 세척한 다음 오븐에서 건조하고 XRD로 측정한 결과 시료에 존재하지 않는 새로운 MgF₂, CaMgAl₂F₁₂ 및 (Mg_{0.80}Al_{0.18})(Al_{1.86}Mg_{0.14})O₄ 3개 화합물의 피크가 관측되었다. 따라서 용해할 때 가능한 불산의 양을 소량가하여야 불용성 화합물이 생성되지 않고 완전히 용해되는 것을 확인할 수 있었다.

3. 결론

칼슘필터에 포집된 테크네튬의 방사능 세기를 측정하기 위하여 먼저 이 필터의 용해방법을 확립하였다. 즉 시료 0.1 그램에 염산 10, 질산 4 그리고 불산 0.1 mL을 가하고 가열판에서 사전 반응없이 250 °C에서 60분 동안 마이크로파 용해장치를 작동하여 완전히 용해하였다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 출연금 주요사업의 일환으로 수행하였으며, 시료를 제공해 준 신진명 박사님에게 감사를 전합니다.

5. 참고문헌

[1] Jang Jin Park, J. M. Shin, J. H. Kim, and K. C. Song, "Trapping Characteristics of Rhenium Using Different Trapping Material", Journal of the Korean Society of Thermo-physical Properties, 2(2), pp, 70-78, (2008).