

<論 文>

無擔體 Pm-147에 관한 研究

諸 元 穆

漢陽大學校 工科大學 原子力工學科

(1976年 3月 23日 接受)

概 要

본 연구는 무단체 Pm-147의 농도 및 pH 변화에 대하여 여과과정에서 膜濾過紙에 대한 吸着상태를 조사하여 무단체 Pm-147의 溶液상태에 있어서 化學的상태 및 吸着 상태에서의 Pm-147의 化학적 상태에 관하여 연구하였다. 이와 아울러 放射能 물질의 擔體로 사용되는  $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 의 共沈상태를 연구하였다.

무단체 Pm-147은 水溶液에서  $\text{Pm}^{3+}$ 상태로 족재 하며 膜여과지에 의한 여과과정에서 吸着이 일어난다. 吸着상태는 pH에 따라 여러가지 이온상태로 존재하고 있다. 즉 pH 5.0까지는  $\text{Pm}^{3+}$ 상태로 존재하며 pH 5.0~6.0까지는 점차로  $\text{Pm}(\text{OH})^{2+}$  상태로 옮아가며 pH 6.0 이상에서는  $\text{Pm}(\text{OH})^{2+}$ 에서  $\text{Pm}(\text{OH})_2^+$ ,  $\text{Pm}(\text{OH})_3^-$  상태로 吸着상태로 흡착상태가 이동한다.  $\text{Fe}^{3+}$ 와  $\text{Pm}^{3+}$ 의 共沈은  $\text{F}(\text{OH})_3^-$ 에 대한  $\text{Pm}^{3+}$ 의 흡착이며 높은 pH 및  $\text{Fe}$  擔體의 量에 따라  $\text{Pm}(\text{OH})^{2+}$  및  $\text{Pm}(\text{OH})_2^+$  등의 상태로 나타나고 있다.

1. 서 론

무단체 방사능 물질에 관한 연구는 극미량 상태에서의 化학적 특성을 규명하는데 있다. 또한 소위 딜하는 방사성콜로이드의 본질을 규명할 수 있고 방사성 동위 원소 이용에 있어서의 방사능 오염제거 방사능 측정 및 분석 조작에 있어서의 이상성을 규명할 수 있다. 극미량 상태에 관한 연구는 1902년 Paneth가 라돈의 봉괴 생성물인  $\text{RaD}$ ,  $\text{RaE}$ ,  $\text{RaF}$ 의 수용액 중에서의 상태에 관한 연구에서 시작한 이래 Starik, Schweitzer<sup>(1)</sup> 등에 의해 많은 방사능 물질에 대하여 흡착법 여과법 확산법 라디오그라피 등에 의해 연구되어 왔다. 그리하여 극미량 상태의 방사능 물질에 대하여 얻어진 결론은 다음 두 가지의 가능성성이 있다고 주장하였다<sup>2)</sup>.

둘째 극미량 상태에 있어서 방사능 물질은 방사성 콜로이드를 생성한다.

둘째 방사능 물질의 콜로이드성 행동은 용기중에 항

상 존재 가능한 불순물( $\text{SiO}_2$ 의 수화물 먼지 등)에 의한 흡착에 기인한다. 이 두 가지 설명을 종합해 보건데 첫째 설명은 용해도적 이론에 모순이 된다. 왜냐하면 극미량 상태에 있는 방사능 물질의 이온 농도가 용해도에 허용되는 최대한의 농도보다 훨씬 적기 때문이다.

둘째번 설명은 Strarik 등에 의한 Po의 유리포션을 쳐서 콜로이드 성을 나타낼 때 그 흡착능력이 최대라는 점을 들어 일시 콜로이드(Pseudo-Colloid)설을 부인하고 있다.

저자는  $\text{Y}-90^{3,4,5}$  및  $\text{Ag}-111^{6)}$ 에 대하여 막여과지를 사용한 여과법에 의해 이들 방사성 동위원소의 극미량 상태를 조사한 결과 여과 과정에서 일어나는 방사능 물질의 흡착 현상으로 설명하는 것이 가장 타당함을 알았다.

본 연구는 막여과지에 대한 무단체 Pm-147의 농도 및 pH 변화에 따른 여과상태를 조사하여 Pm-147의 용액 중 상태 및 막여과지에 대한 흡착상태를 연구하였다. Pm-147은 우라늄-225의 핵분열에 의하여 생성된 인공

원소이며 화토류원소의 일원으로 아직 충분한 화학적상태가 알려져 있지 않으므로 또한 흥미롭다. 이와 아울러 방사능 물질의 단체로 사용되는  $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 와 Pm-147의 공침상태를 연구하였다.

## 2. 실험

### 1. 실험 재료

모든 비방사능 화학약품은 일급시약을 사용하였고 실험에 사용한 중류수는 일차는 이온교환수지를 통과하고 이차는 소량의  $\text{KMnO}_4$ 를 가하여 중류하고 삼차는 산성에서 소량의  $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ 을 가하여 중류하였다.

### 2. 방사능 측정

방사능 측정은 단창 G-M계측기를 실진법 계수기 (Nuclear Chicago 제)에 연결하여 반감기 2.6년의 Pm-147에서 방출되는  $\beta$ 입자를 계측하였다. 이 때 측정시간은 표준편차가 1%이내가 되도록 조절하였다.

### 3. Pm-147방사능의 절대 측정

영국 Radiochemical Center, Amersham에서 구입한  $100\mu\text{Ci}/\text{ml}$ 의 Pm-147 표준용액에서 피펫을 사용하여  $500\lambda$ 를 취하여 알루미늄판에 담아 적외선 램프로서 전조시켜 그 방사능을 측정하고 디지시료를 같은 조건에 그 방사능을 측정 비교하여 절대측정 하였다. 이리하여 시료의 방사능에서 그 농도를 계산할 수 있다

### 4. NaOH 용액 중에 존재하는 탄산염이온의 제거

Amberite IR-400(음이온 교환수지) 약 50g을 산 및 알카리로 처리하여 적경 2.5cm 높이 35cm의 판에 넣어 1M. NaOH 용액을 가해 음이온을 수산기로 바꾼 다음 이온교환 수지를 중류수로 셋었다. 그 다음 0.1M NaCl 을 가하여 NaOH 용액을 용리하였다. 이 때 용리액은  $\text{CO}_3^{2-}$ 이 없는 NaOH 용액을 얻을 수 있다. 왜냐하면 이온교환수지가 OH 기로 바뀔 때  $\text{CO}_3^{2-}$ 도 같이 부착되고 NaCl로 용리할 때  $\text{CO}_3^{2-}$ 은 용리되지 않기 때문이다.

### 5. 막여과자에 대한 Pm-147의 흡착 시료제조

15mCi/ml Pm-147용액에 9ml의 중류수를 가하여 회석한 다음 그 중 1ml( $\sim 1.5\text{mCi}$ )를 주사기로 뽑아서 0.1N NaCl 용액에 가하여 75ml로 만든 다음 그 중 25ml를 다시 0.1N NaCl 용액을 가하여 75ml로 만들었다. 이런 과정을 되풀이하여 Pm-147의 회석용액을

다음과 같이 만들었다. 이 때 0.1N NaCl 용액을 사용한 것은 일정한 이온 강도를 유지하기 위해서이다.

시료번호	회석률	방사능	용적
1	1	$\sim 1$ mCi	50ml
2	3	$\sim 0.3\text{mCi}$	"
3	9	$\sim 0.1\text{mCi}$	"
4	27	$\sim 0.03\text{mCi}$	"

이렇게 만든 각 시료 용액의 pH를 6.0으로 조절한 다음 5ml 피펫으로 등분하여 10ml 비이커에 넣었다. 각 분배된 용액의 pH를 Pm-147의 농도와 같은 HCl 용액으로 조절하여 pH 2~6되는 여러 시료를 만들었다. 이리하여 각 시료는 통일한 Pm-147의 농도를 유지할 수 있다. 모든 pH 측정은 Coleman model 39pH 측정기를 사용하였다. 각 시료용액은 한시간 이상 방치하여 완전히 평행에 도달시킨 다음 다시 pH를 측정하였다.

적경 25mm 탁여과자(HA Type Millipore)를 microsyringe filter holder (Cat. No. XX3002500: Millipore)에 부착하여 10ml 주사기로 시료용액을 흡입하여 filter holder에 연결하여 여과하였다. 약 1ml 가량의 첫 여과액은 버리고 나머지 여과액을 시료로 채취하였다. 여과액은 그 방사능의 강도에 따라서 미량 피펫으로 50~500 $\lambda$  취하여 1인치 알루미늄판에 넣어 적외선 램프로 견조하여 그 방사능을 측정하였다. 이 때 막여과자에 대한 부착률은 여과액의 Pm-147의 방사능 ( $A_f$ )에서 여과액의 방사능 ( $A_s$ )을 빼면 막여과자에 부착된 Pm-147의 방사능 ( $A_d$ )을 구할 수 있다. 즉  $A_d = A_f - A_s$  이고

$$\text{부착률 } \theta (\%) = \frac{A_d}{A_f} \times 100$$

으로 표시된다.

### 6. Pm-147의 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 에 대한 흡착공침 시료제조

$\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 를 0.1N NaCl에 녹여 5.0mg/ml, 1.0mg/ml, 0.50mg/ml 되는 용액을 80ml 씩 만들어 여기에 앞서 만든 Pm-147 용액 0.1ml를 5ml로 회석하여 각 시료에 500 $\lambda$  씩 Pm-147을 가하였다. 이 방사능은 각 시료당 약  $150\mu\text{Ci}$ 에 해당한다. 각 시료를 10ml 씩 원심분리기판에 넣어 그 pH를 1.5~5.0까지 일의로 조절하여 하루동안 전탕기(Shaker)에서 혼들어 준 다음 원심분리기에서 한시간 침전시켰다. 이 때 회전속도는 2500rpm이었다. 용액의 pH를 다시 측정한 다음 각 시료용액 500 $\lambda$ 를 취하여 그 방사능 ( $A_s$ )을 측정하였다. 이때  $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 에 부착된 Pm-147의 방사능 ( $A_d$ )은 처음 시료의 총 방사능 ( $A_f$ )에서 용액의 방사능 ( $A_s$ )을 뺀 것이다.

즉  $Ad = A_t - As$ 이며  $Fe(OH)_3$ 에 대한 흡착  $\theta$ 은  
 $\theta(\%) = \frac{Ad}{A_t} \times 100$ 으로 나타낼 수 있다.

### 3. 실험 결과

#### 1. 농도 및 pH 변화에 따른 Pm-147의 막여과지에 대한 흡착률

Pm-147의 농도  $8.02 \times 10^{-6}$ ,  $3.17 \times 10^{-6}$ ,  $7.32 \times 10^{-7}$  및  $3.02 \times 10^{-7}$  moles/l에서 pH 변화에 따른 Pm-147의  $450m\mu$  막여과지에 대한 부착률을 그림 1에서 표시하였다. Pm-147의 부착률은 동일한 pH 값에서 Pm-147의 농도가 높을수록 또한 pH 값이 클수록 높은 부착률을 나타내고 있다.

또한 pH=3.0에서 부착률은 영에 가깝고 pH=6.0에서 100%의 부착율을 나타낸다. 이 실험에서 얻어진 결과가 Pm-147의 방사성 쿠로이드의 부착인지 또는 여과 과정에서 일어난 흡착인지를 알기 위하여 pH 4.0, 4.5, 5.0, 5.5, 6.0, 6.5에서 막여과지에 흡착된 Pm-147의 농도의 대수에 대한 여과 용액의 대수사이의 관계를 조사하였다. 그 결과는 그림 2에서 표시된 바와 같이 각 주어진 pH에서 직선관계를 나타내고 있다. 이 사실은 Freundlich 흡착 등온식이 성립됨을 알 수 있다. 즉 Freundlich 흡착등은 식은 아래와 같이 표시된다.

$$\frac{g}{M} = k_0 C_1^{-\frac{1}{n}} \quad (1)$$

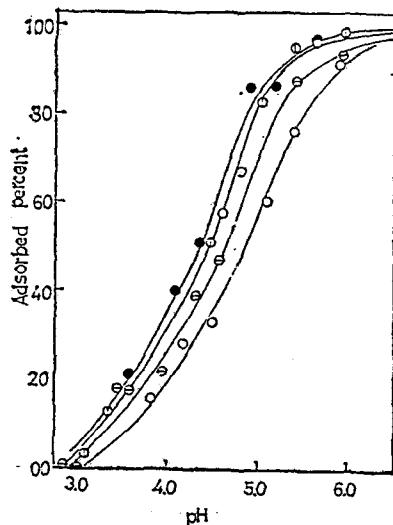


Fig. 1. Percent Pm-147 adsorbed vs. pH at Pm concentrations of  $8.02 \times 10^{-6}$  moles/l (○)  $3.17 \times 10^{-6}$  moles/l (◐)  $7.32 \times 10^{-7}$  moles/l (◑) and  $3.02 \times 10^{-7}$  moles/l (●).

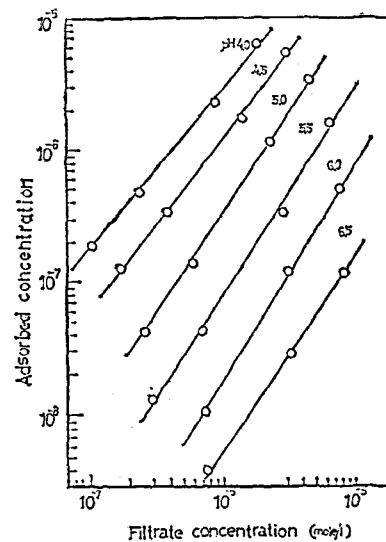


Fig. 2. Pm-147 concentrations of filtrate vs. Pm-147 concentration adsorbed at various pH.

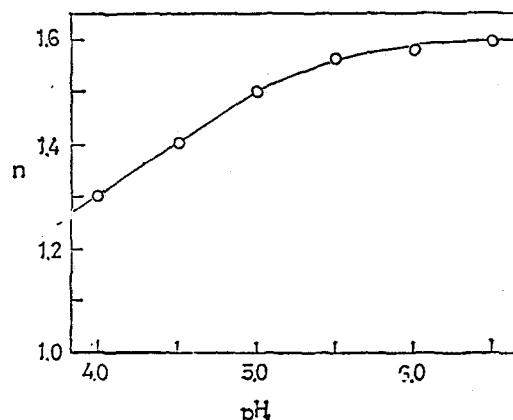


Fig. 3. Variation of  $n$  values of Freundlich adsorption isotherm vs. pH.

여기서  $g$ : 흡착된 양  $M$ : 흡착물의 양  $C$ : 용액의 농도  
 $k$ ,  $n$ : 온도, pH에 따른 상수

그런데 막여과지의 무게는 일정하므로

$$g = M k_0 C^{\frac{1}{n}} = k' C^{\frac{1}{n}} \quad (2)$$

흡착농도는 흡착된 양( $g$ )에 비례하므로 흡착농도를  $Ad$  여과용액의 농도를  $As$ 로 표시하면

$$Ad = k' As^{\frac{1}{n}} \quad (3)$$

(3)식의 대수를 취하면

$$\log Ad = \log k + \frac{1}{n} \log As \quad (4)$$

이다. 따라서 여과용액의 농도의 대수와 흡착농도의 대수사이에 비례관계가 존재한다면 Freundlich 흡착등은식이 성립됨을 알 수 있다. 이 때 Freundlich 흡착등은식의 상수  $n$  값이 pH에 따른 변화는 그림 3에 표시된 바와 같이 pH가 4에서 6.5에 이르기까지 증가하고 있으며 pH가 높을수록 일정한 값에 접근하고 있다.

#### 2. pH 변화에 따른 Pm-147의 $\text{Fe(OH)}_3$ 에 대한 흡착률

Pm-147의 농도가 약  $2.10 \times 10^{-7}$  mole/l에서  $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  5mg/ml 1mg/ml 0.5mg/l의 농도에서 pH 변화에 따른 Pm-147의  $\text{Fe(OH)}_3$ 에 대한 부착률의 변화를 그림 4에서 표시하였다. 막여과지에 의한 흡착과 같이 높은 pH에서 부착률이 증가하고 동일한 pH에서는  $\text{Fe(OH)}_3$ 의 량이 클수록 부착률은 증가하고 있다.

#### 4. 고 칠

##### 1. 막여과지에 대한 Pm-147의 흡착상태와 용액중의 Pm-147의 상태

pH 변화에 따른 막여과지에 대한 Pm-147의 흡착률의 변화는 Y-90<sup>3)</sup> 및 La-140<sup>4)</sup>에 대하여 얻어진 결과와 비교할 때 거의 동일한 결과를 나타내고 있음을 알 수 있다. 이 결과는 Y-90 및 La-140이 모두 전이원소

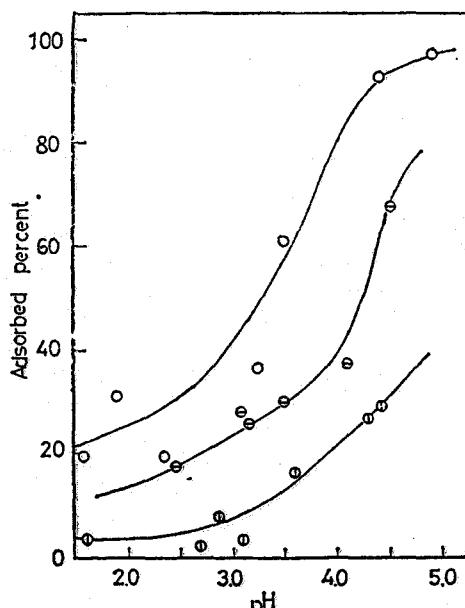
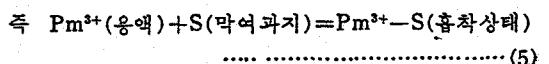


Fig. 4. Percent Pm-147 adsorbed vs. pH at the amount of Fe carrier of  $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  5mg/ml (○) 1mg/ml (⊖) and 0.5mg/ml (⊖).

로서 수용액에서 같은 3+의 원자가를 갖고 있는 결과로 생각된다.

Freundlich 흡착등은식의 상수  $n$  값이 Ag-111<sup>5)</sup> 및 Y-90에 대한 실험결과에 비교할 때 높은 pH에서 일정한 값에 접근한다는 사실은 일치하나 이런 실험에서는  $n$  값이 큰 변화를 나타내고 있지 않았다. 이 사실은 이번 실험에서 0.1N NaCl 용액을 사용하여 용액의 이온강도를 일정하게 유지한데 비해 Y-90 및 Ag-111에 대한 실험에서는 이온강도를 일정하게 유지하지 않았다는 데 기인하는 것으로 생각된다. 즉 막여과지에  $\text{Na}^+$ 의 흡착이 일정하게 유지됨으로써  $n$  값이 비교적 일정하게 유지될 것으로 생각된다. 그러면 다음으로 흡착된 Pm-147의 상태와 용액중에서의 Pm-147의 상태를 비교해 보자. 전이원소의 수산화물  $[\text{M}(\text{OH})_3]$ 의 용해도적<sup>6)</sup>  $[\text{M}^+] [\text{OH}^-]^3 = K_{sp}$  는  $10^{-20}$  이상이고 지금 Pm-147의 농도가  $10^{-6}$  moles/l보다 적으므로 여하한 pH에서도 첨전이 생길 가능성성이 없다. 따라서 수용액 중에서 Pm-147은 완전히 이온화하고 있다고 가정하는 것이 타당할 것이다.

다음에 여과 과정에서  $\text{Pm}^{3+}$ 가 막여과지에 흡착이 일어나고 이 흡착된  $\text{Pm}^{3+}$ 는 수용액중의  $\text{Pm}^{3+}$ 와 평행상태에 있다고 생각하자.



$\text{Pm}^{3+}$ 은 수화(Hydration)되어 있으며  $\text{Pm}^{3+}$ 의 흡착이 증가되며 수소이온을 방출하고  $\text{Pm}(\text{OH})^{2+}$ 이 될 것이다

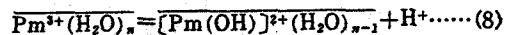


여기서 화학기호 상부의 선은 흡착상태를 표시한다. 다음으로 흡착된 수소이온은 꼭 탈착할 것이다.

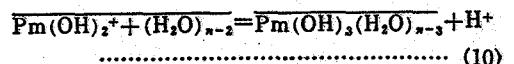
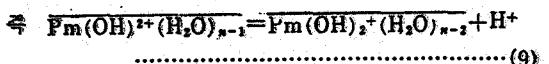


이 사실은 여과과정에서 pH변화가 일어나지 않는 사실로 미루어 타당한 것으로 생각된다.

따라서 (6)식 및 (7)식에서



흡착된  $\text{Pm}^{3+}$ 의 농도가 클수록  $\text{H}^+$ 농도가 작을수록 평형이 오른쪽으로 이동할 것이며 따라서 2차 3차의 가수분해가 일어날 것이다.



지금 흡착상태에서 Freundlich 흡착등은식이 성립된다면

지금 흡착된 상태의 총  $Pm-147$ 의 농도( $Ad$ )는 이온 상태의 수산화물 상태의 농도의 합이 될 것이다.

따라서

$$Ad = \overline{[\text{Pm}^{3+} + \text{Pm(OH)}^{2+} + \text{Pm(OH)}_2^+]} + \overline{\text{Pm(OH)}_3} \quad \dots \quad (12)$$

이다. 여기서 수화된 상태로 표시하지 않아도 수화된 것으로 양해한다.

지금 (4)식 (5)식 (6)식에서 흡착된 상태의  $P_m$ 의 가수분해 상수는 다음과 같다.

$$K_{h1} = \frac{[\text{Pm(OH}^{2+})][\text{H}^+]}{[\text{Pm}^{3+}]}$$

$$K_{h2} = \frac{[\text{Pm(OH}_2^+)[\text{H}^+]}{[\text{Pm(OH}^{2+}]}$$

$$K_{h3} = \frac{[\text{Pm(OH}_3^+)(\text{H}^+)}{[\text{Pm(OH}_2^+]} \quad \dots \dots \dots \quad (13)$$

따라서

$$\begin{aligned} [\text{Pm(OH)}^{2+}] &= \frac{[\text{Pm}^{3+}] K_{h1}}{[\text{H}^+]} \\ [\text{Pm(OH)}_2^+] &= \frac{[\text{Pm}^{3+}] K_{h1} K_{h2}}{[\text{H}^+]^2} \\ [\text{Pm(OH)}_3^-] &= \frac{[\text{Pm}^{3+}] K_{h1} K_{h2} K_{h3}}{[\text{H}^+]^3} \quad \dots \dots \dots (14) \end{aligned}$$

(10)식을 (8)식에 대입하면

$$Ad = \frac{Pm^3+}{[\text{H}^+]} \left\{ 1 + \frac{K_{h1}}{[\text{H}^+]} + \frac{K_{h1}K_{h2}}{[\text{H}^+]^2} + \frac{K_{h1}K_{h2}K_{h3}}{[\text{H}^+]^3} \right\} \quad (15)$$

여과 용액의  $Pm^{3+}$ 의 농도  $[Pm^+]$ 를  $As$ 로 표시하였다.

(11)식 및 (15)식에서

$$Ad = kAs^{1/n} \left\{ 1 + \frac{K_{h1}}{[\text{H}^+]} + \frac{K_{h1}K_{h2}}{[\text{H}^+]^2} + \frac{K_{h1}K_{h2}K_{h3}}{[\text{H}^+]^3} \right\} \quad (16)$$

지금  $P_{M^{3+}} > P_{M(OH)_2^{2+}}$ 이면  $1 > K_w / [H^+]$ 이고

따라서  $Ad = kAs^{1/n}$  이다.

양변의 대수를 취하면

$$\log Ad - \frac{1}{n} \log As = \text{Const} \quad \dots \dots \dots \quad (17)$$

$[H^+]$ 가 같을 때  $I \leq K_{w}/[H^+]$ 이 됨

$$\Sigma \overline{Pm^2+OH} < \overline{Pm^{3+o}} \Sigma$$

[H<sup>+</sup>]가 더욱 감소하면  $\overline{P_{m^{2+}}(OH^-)} < \overline{P_{m^{2+}}(OH^-)_0}$ 이 됨

이고 또한  $\text{Pm}^{2+}(\text{OH})_2 \ll \text{Pm}(\text{OH})_3$ 이면

$$\log Ad - \frac{1}{n} \log As = 3 \text{ pH} + \text{Const.} \dots \dots \dots (20)$$

따라서 pH에 따른  $\log Ad - \frac{1}{n} \log As$ 의 변화를 도표에 그리면 pH 기울기가 0에서 3으로 변화할 것이다.

pH에 따르는 Pm-147의  $(\log Ad - \frac{1}{n} \log As)$  값의 변화를 그림 5에서 표시하였다. pH 값이 4~5까지는 pH의 기울기가 차차 증가하여 1의 값을 나타내고 6이상에서 1~3의 값을 나타내고 있다. 이 결과는 축적된 상태가 수소이온 농도가 감소함에 따라  $Pm^{2+}$ 에서  $Pm(OH)^{2+}$ ,  $Pm(OH)_2^+$ ,  $Pm(OH)_3$ 로 변하고 있음을 밝혀 주고 있다. 이 결과는 Y-90에 대한 실험결과와 비교할 때 Pm-147은 높은 pH까지  $Pm^{2+}$ 상태를 유지하고 있다. 즉 Y-90의 경우는 pH 4.5~5.0까지는  $Y^{3+} \sim Y(OH)^{2+}$  상태 pH 5.0~5.5까지는  $Y(OH)^{2+} \sim Y(OH)_2^+$  상태를 또 pH 5.5~6.0까지는  $Y(OH)_2^+ \sim Y(OH)_3$  상태를 유지하고 있다. 이 차이점은 본 실험에서는 일정한 이온 강도를 유지하기 위하여 0.1N NaCl을 사용한데 기인한다고 본다. 즉  $Na^+$ 이 막여  $Y^{3+}$ 의 등극되어 pH에 관계없이 Fm-147의 수산화물 형성에 방해하기 때문에 Y-90 때보다 높은 pH에서 수산화물이 형성되는 것으로 생각된다.

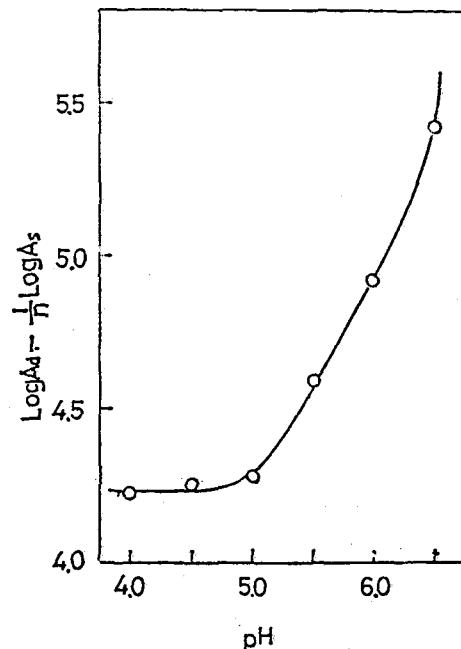


Fig. 5. Change of the Value of  $(\log Ad - \frac{1}{n} \log As)$  vs. pH.

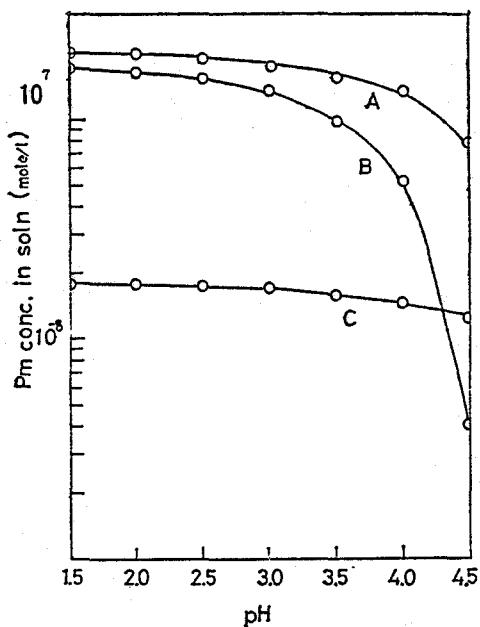


Fig. 6. Variations of Pm-147 concentration in solution vs. pH: Curve A;  $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  1mg/ml, Curve B; 5mg/ml, Curve C; 0.5 mg/ml.

## 2. $\text{Fe(OH)}_3$ 에 대한 Pm-147의 흡착상태

방사성 동위원소의 단체(carrier)로 사용되는  $\text{Fe(OH)}_3$ 와 Pm-147이 공침을 할 때의 Pm-147의 상태를 알기 위하여 pH에 따르는 수용액 중의 Pm-147의 농도 대수의 관계를 그림 6에서 표시했다.

이 결과는 다음과 같은 설명에서  $\text{Fe(OH)}_3$ 와 혼합침전을 이루어 침전이 된 것이 아니고 Pm-147이 이온 상태로 단순히  $\text{Fe(OH)}_3$ 에 흡착을 이루고 있음을 알 수 있다. 지금  $\text{Fe(OH)}_3$ 의 용해도적은 다음과 같다.

$$[\text{Fe}^{3+}][\text{OH}^-]^3 = K_{\text{sp}} \quad (21)$$

$$\therefore [\text{Fe}^{3+}] = \frac{K_{\text{sp}}}{K_w^3} - [\text{H}^+]^3 \quad (22)$$

(22)식의 대수를 취하면

$$\log[\text{Fe}^{3+}] = -3\text{pH} + \text{Const} \quad (23)$$

따라서 pH에 따르는  $\log[\text{Fe}^{3+}]$  값이 가울기는 -3을 나타내야 할 것이다. 그런데 Pm-147이  $\text{Fe}^{3+}$ 와 혼합결정을 이루어서 공침을 한다면  $\log[\text{Pm}^{3+}]$  값도 역시 -3의 값을 나타내야 할 것인데 그림 6에서 보는 바와 같이 곡선 A 및 C( $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  1mg/ml, 50mg/ml)에서는 pH에 따르는  $\log[\text{Pm}^{3+}]$  값이 변화가 없고 곡선 B( $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  5mg/ml)에서는 pH 4~4.5에서 -1의 기

울기를 표시하고 있다. 이것은 Pm-147이  $\text{Fe(OH)}_3$ 와  $\text{Pm}^{3+}$ 상태로 흡착되어 있음을 나타내 준다.

높은 pH와 다량의  $\text{Fe(OH)}_3$ 에서 차차  $\text{Pm}(\text{OH})^{2+}$  상태의 흡착이 이루어지고 있음을 표시하고 있다.

## 5. 결 론

무단체 Pm-147은 수용액에서 완전히 이온화된  $\text{Pm}^{3+}$  상태로 존재하고 있으며 여과 과정에서 Pm-147은 클로아이드를 형성하여 박여과자에 부착하는 것이 아니고 pH에 따라 여러가지 이온상태로 흡착이 일어나고 있다. 즉 이온강도 0.1N NaCl 용액에서 pH 5.0까지는  $\text{Pm}^{3+}$  상태로 존재하고 pH 5.0~6.0까지는 차차  $\text{Pm}^{3+}$  상태에서  $\text{Pm}(\text{OH})^{2+}$ 상태로 옮겨가며 pH 6.0 이상에서는  $\text{Pm}(\text{OH})^{2+}$ 에서  $\text{Pm}(\text{OH})_2^{+}$ ,  $\text{Pm}(\text{OH})_3$  상태로 흡착상태가 이동하고 있다.  $\text{Fe}^{3+}$ 와  $\text{Pm}^{3+}$ 의 공침은  $\text{Fe(OH)}_3$ 에  $\text{Pm}^{3+}$ 의 흡착이며 높은 pH 및  $\text{Fe}$  단체의 양에 따라 차차  $\text{Pm}(\text{OH})^{2+}$ ,  $\text{Pm}(\text{OH})_2^{+}$ , ..., 등으로 나타나고 있다.

본 연구는 과학기술처의 연구개발계획에 따른 연구(R-73-72) 결과이다.

## References

- 1) I. E. Starik, "Principle of Radiochemistry," AEC-tr-6313 (1964)
- 2) N. I. Ampelogava "State of Micrquantities of Radioelements in Solution" AEC-tr-6390466-474, (1964)
- 3) Won Mok Jae, J. Kor. Chem. Soc. 14(4), 347 (1970)
- 4) Won Mok Jae, J. Kor. Chem. Soc. 16(1), 1 (1972)
- 5) Won Mok Jae, J. Kor. Chem. Soc. 15(4), 199 (1971)
- 6) Won Mok Jae, J. Kor. Chem. Soc. 17(5), 319 (1973)
- 7) G. K. Schweitzer, B. R. Stein, and W. M. Jackson, J. Amer. Chem. Soc., 75, 793 (1953)
- 8) G. K. Schweitzer and W. M. Jackson, J. Amer. Chem. Soc. 74, 4178 (1952)
- 9) W. J. Blaedel and V. W. Meloche "Elementary Quantitative Analysis," Harper & Row, New York, p. 918 (1964)

### Abstract

## Studies on Carrier-Free Promethium-147

Won Mok Jae

*Department of Nuclear Engineering, Hanyang University, Seoul, Korea*

The present investigation was intended to study the state of Pm-147 in solution and its adsorbed state on membrane filters by varying the concentrations of Pm-147 solution and its pH.

Also, the study on the coprecipitation of Pm-147 with Fe(OH)<sub>3</sub> was carried out by varying amounts of Fe(OH)<sub>3</sub> and pH of the solution.

The carrier-free Pm-147 exists in an ionic state of Pm<sup>3+</sup> in solution, and is adsorbed on membrane filter in filtration process. The adsorbed state of Pm-147 on the membrane filter shows various ionic state at a constant ionic strength of 0.1M NaCl, that is, Pm<sup>3+</sup> state exists until pH value of 5.0, then gradually Pm(OH)<sup>2+</sup> state appears between pH value of 5.0 to 6.0, and the state of Pm(OH)<sub>2</sub><sup>+</sup> and Pm(OH)<sub>3</sub> would be expected at the higher pH value of 6.0.

Coprecipitation of Pm-147 on Fe(OH)<sub>3</sub> is an adsorption phenomenon in an ionic state of Pm<sup>3+</sup> in acidic condition. At higher pH and larger amount of Fe carrier, the adsorbed state of Pm-147 shows Pm(OH)<sup>2+</sup> and Pm(OH)<sub>2</sub><sup>+</sup> state.

As a results of the present studies, it is seen that the characteristic of carrier free radioisotopes is not due to the radioactivity, but due to the adsorption of ultramicroquantity of radioisopes. Therefore, the knowledge on the ultramicroquantity of radioisotopes could help for the solution of decontamination in handing and chemical procedure with radioisotopes.