

Sample pre-treatment for measurement of ^{129}I in radwastes

방사성폐기물 중 ^{129}I 측정을 위한 시료의 전처리

Ke-Chon Choi, Sun-Ho Han, Kwang-Yong Jee and Ki-Seop Choi*

Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Duckjin-dong, Yuseung-Gu, Daejeon

*Korea Hydro & Nuclear Power Co. Ltd., 167 Samsung-dong, Kangnam-gu, Seoul

nkcchoi@kaeri.re.kr

최계천, 한선호, 지광용, 최기섭*

한국원자력 연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

* 한국수력원자력(주), 서울특별시 강남구 삼성동167번지

(Received October 18, 2004 / Approved February 02, 2005)

Abstract

Many different kinds of radwastes are discharged from the nuclear power plants, and ^{129}I is included in these radwastes. Recovery test of ^{129}I was evaluated for different radwastes(dry active waste, sludge, spent resin and simulated evaporator bottom). Recovery of ^{129}I for dry active waste by acid leaching with 1.8% NaClO was 74.3%(RSD,2.2%) and ^{129}I for spent rein by alkali fusion method with KOH as a flux agent was 87.7%(RSD,0.9%), respectively. Iodide in simulated evaporator bottom containing a high concentration of borate was adsorbed with anion exchange resin at pH 7 phosphate buffer solution. Recovery of ^{129}I for anion exchange resin was 92.5% and not affected up to 1,200 $\mu\text{g/mL}$ H_3BO_3 (as a Boron). Recovery of ^{129}I for the spent resin from nuclear power plant was 87.2% (RSD,1.2%).

Key Words; sample pre-treatment, ^{129}I , radwastes, recovery

요약

원전에서 발생되고 있는 방사성폐기물 중 ^{129}I 의 정량을 위하여 시료의 특성에 맞는 최적의 시료 전처리 및 회수방법을 고찰하였다. 난용성시료 중 모의 잡고체와 수지에 함유된 요오드를 산 침출법과 알칼리 용융방법으로 분리하여 회수율을 측정된 결과 74.3%(RSD, 2.2%), 87.7%(RSD,0.9%)의 회수율을 각각 나타내었다. 모의 농축폐액 중 ^{129}I 를 pH 7의 음이온 수지에 흡착시켜 선택적으로 분리한 후 회수율을 측정된 결과 92.5%의 회수율을 나타내었다. 폐액 중 함유되어있는 고 농도의 붕소가 요오드 회수율에 미치는 영향을 조사한 결과 1,200 $\mu\text{g/mL}$ 이하

의 붕소는 ^{129}I 의 분리 및 정량에 영향을 주지 않았다. 원전 내 현장시료인 폐수지 중 ^{129}I 회수율을 칼럼용리방법으로 분리 후 측정된 결과 87.2%(RSD,1.2%)를 나타내었다.

중심단어: 시료전처리, ^{129}I , 방사성폐기물, 회수율

1. 서 론

세계 여러 나라에서는 원전을 비롯한 기타 핵시설로부터 배출되고 있는 방사성폐기물의 처리 처분과 관련하여, 방사성 혹은 생물학적 독성이 있는 α 나 β 방출핵종 등 규제핵종 선정기준을 마련하고 이에 대한 규제를 강화하고 있다. 최근 국내에서도 원전에서 배출되고 있는 방사성폐기물의 운반 및 처분과 관련하여 규제가 예상되는 대상 핵종을 선정하고 α 나 β 방출핵종 등에 대한 농도 예측과 검증방법에 관한 연구가 진행되고 있다. 규제 핵종으로 예상되는 ^{129}I 의 경우 ^{99}Tc 과 함께 핵분열에 의하여 생성되는 휘발성 방사성핵종으로서 방사선의 비방사능이 매우 낮아(6.4 Bq/ μg) 직접 측정이 어려운(DTM:difficult-to-measure)대표적 방사성 원소이다. 최근 DTM 방사성 핵종에 대한 방사능의 농도를 측정하기 위하여 쉽게 측정이 가능한(ETM: easy-to-measure)방사성 핵종인 ^{60}Co , ^{137}Cs 등의 γ 방출핵종을 기준핵종으로 정하고 ^{235}U 가 핵분열을 일으켰을 때 생성된 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 의 방사능 비율을 척도화(scaling)하여 기준 핵종의 방사능 계측으로부터 대상 핵종의 농도를 예측하는 방법을 이용한다. 그러나 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 의 방사능 비는 핵분열도(fission yield)와 원전에서 배출되는 폐기물의 종류 및 형태에 따라 각각 다르게 되므로 각 발전소마다 고유의 척도인자(scaling factor)산출을 위하여 개별 핵종에 대한 정확하고 신뢰할 수 있는 화학분석법이 요구되고 있다.

^{129}I 의 측정방법으로서 최근 관심의 대상이 되고 있는 가속질량분광법(AMS: Accelerator Mass Spectrometry)[1]과 유도결합 플라즈마 질량분광법(ICP-MS; Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry)[2]을 비롯하여 중성자 방사화분석법(NAA: Neutron Activation Analysis)[3-4], 액체섬광

계수 측정법(LSC: Liquid Scintillation Counting Method)[5], γ -선 분광법등이 있다[6-9]. ^{129}I 를 정량하기 위해서 시료의 전처리 과정을 통한 요오드의 분리공정이 선행되어야 한다. 분리 방법에는 혼합산을 이용하여 용해시킨 후 용해과정에서 산화된 요오드를 분리하는 방법[5]과 알칼리 용융제와 산화제를 함께 넣고 용융시키는 알칼리 용융법[10], 휘발성 요오드특성을 이용한 증류법[11], 이온상태의 I를 이온교환수지를 이용하여 분리하는 이온교환 수지분리법[12]과 활성탄 흡착법[13] 등이 흔히 사용하는 방법이다. 가용성시료의 경우 산 용해에 의한 분리방법을 선택할 수 있으나 시료의 분해과정에서 휘발성 요오드로 인한 손실이 발생할 수 있다. 환경이나 원전 등에서 배출되고 있는 방사성폐기물은 몇몇 종류를 제외하고 대부분 난용성 시료로서 산을 이용한 용해방법보다는 비교적 저온(약 450 $^{\circ}\text{C}$ 전후)의 알칼리 분위기에서 용융시키는 방법을 이용하여 분리한다. J. H. Chao[10] 등은 방사성폐기물 중 수지류에 함유된 ^{129}I 를 알칼리 용융법으로 용해하여 요오드를 분리한 후 MgI_2 침전을 형성시켜 이것을 중성자방사화 분석방법으로 분석하여 그 결과를 발표하였다. 농축폐액의 경우 다양한 형태의 이온들과 고농도의 붕소가 함유되어 있어 이들 이온으로부터 요오드를 선택적으로 분리해야 한다. F. Verzezen[14] 등이 PWR로부터 발생된 일반 폐수중의 ^{129}I 핵종을 음이온수지에 흡착시킨 후 회수율을 측정하여 보고하였으나 붕소의 영향에 대한 관찰내용은 없었다.

본 연구의 목적은 원전 등에서 배출되고 있는 난용성 방사성폐기물시료 중 ^{129}I 회수율을 결정하기 위하여 시료의 특성에 따른 최적의 전처리 방법과 회수방법을 고찰하여 요오드 양을 결정하는데 있다. 난용성시료 중 잡고체 및 수지류의 경우 용리제를 이용한 산 침출방법으로 요오드를 분리하여 회수

을 비교 검토하였으며 산 침출방법으로 분리가 곤란한 수지류의 경우 알칼리용융방법과 칼럼용리법으로 전처리 한 후 회수율을 검토하였다. 이와 함께 다량의 붕소가 함유된 모의 방사성농축폐액 중 ^{129}I 의 회수율을 음이온수지에 흡착 후 용리하는 방법으로 분리하여 회수율을 비교 검토함으로써 원전에서 배출되고 있는 다양한 시료 중 ^{129}I 정량을 위한 최적의 분리 및 회수조건을 찾고자 하였다.

II. 재료와 방법

가. 시약 및 기기

표준물질로서 사용된 ^{129}I (NIST-SRM-4949c)는 $\text{NaI}/0.1 \text{ M Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 로서 방사능 농도가 2587 Bq/mL인 표준용액을 희석하여 사용하였다. ^{129}I 의 흡착을 위해 사용된 음이온 수지는 Bio rad 사 음이온 교환수지(AG 1x2, 50-100 mesh)를 사용하였다. ^{129}I 운반체로서 사용된 KI는 순도 99.9%의 Aldrich 사 제품을 사용하였고, 추출제로서는 CCl_4 를 0.1 M 질산으로 평형시킨 후 사용하였다. 환원제로서 $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$ 와 역 추출제로서 NaHSO_3 등은 Aldrich사 제품의 시약급을 사용하였다. 화학적 회수율을 결정하기 위한 I요오드 측정에는 DIONEX사의 이온크로마토그래프를 이용하였다. ^{129}I 에 대한 β 방사능의 측정에는 모델 2500 TR/RB, Packard 사의 액체섬광계수기(Liquid Scintillation Counter)를 이용하였다

나. 실험

1) 산 침출 방법에 의한 잡고체, 수지류의 전처리

잡고체(실험복, 고무장갑, 마스크 류) 5.0 g을 달아서 가로, 세로 0.5 × 0.5 cm 크기로 자르고, 수지류는 2.5 g을 달아서 각각 100 mL 용량의 마개 달린 등근 플라스크에 넣는다. KI 1.0 mL(1000 $\mu\text{g}/\text{mL}$)와 침출제로서 10% NaClO 50 mL를 가하고 마개를 닫은 후 자석 짓개로 저어주면서 4시간 정도를 침출시킨 후 여과지(whatman #42)로 여과한 다음, 여액은 1.0 M HNO_3 으로 평형시킨 10 mL의 CCl_4 를 가한 후

즉시 마개를 닫고 5 분간 추출한 후 상 분리를 위하여 2시간 동안 정체시킨다. 유기층의 I_2 를 0.1 N NaHSO_3 로 5mL로 역추출한 후 수층 1mL를 취하여 이온 크로마토그래피로 측정하였다.

2) 알칼리 용융법에 의한 수지류의 전처리

음이온 교환수지(AG 1x2, 50-100 mesh) 1.0 g을 취하여 50 mL 용량의 백금도가니에 넣고 용융제로서 5 g의 KOH와 산화제로서 0.5 g의 KNO_3 와 표준 KI 1.0 mL(1000 $\mu\text{g}/\text{mL}$)를 넣고 잘 혼합한다. 뚜껑을 덮은 후 전기로의 온도를 100-120°C 부근에서 충분히 건조시킨 다음 200°C에서 1시간 정도 정체한 후 다시 450°C까지 천천히 올리면서 용융시킨다. 시료가 완전히 용융되면 증류수로 용해시킨 후 여과하고 여액 중 일부를 취하여 60 mL의 분액깔때기에 넣고 질산으로 산도를 조절한 후 200 mg의 NaNO_2 를 가한다. 10 mL의 CCl_4 를 가한 후 즉시 마개를 닫고 5 분간 추출한 후 상 분리를 위하여 2시간 동안 정체시킨 다음 유기층의 I_2 를 0.1 N NaHSO_3 로 5mL로 역추출한 후 수층 1mL 취하여 이온 크로마토그래피로 측정하였다.

3) 칼럼용리 방법에 의한 수지류 전처리

음이온 교환수지(AG 1x2, 50-100 mesh)에 요오드 운반체와 표준 ^{129}I 를 흡착시킨 후 칼럼용리 방법으로 분리하기 위하여 2.5 g, KI(1000 $\mu\text{g}/\text{mL}$) 1.0 mL, 표준 ^{129}I (2587 Bq/mL) 10 μL , pH 7 phosphate 완충용액 20 mL 를 가한 다음 4시간 정도 흡착시킨다. 이것을 지름 $\phi = 0.8 \text{ cm}$ 폴리에틸렌 칼럼에 충전시키고 20 mL의 증류수를 2회에 걸쳐 씻어준 다음 1.8% NaClO 20 mL를 4회에 걸쳐 칼럼에 용리시키고 20 mL의 증류수로 칼럼내의 수지를 다시 용리시켜 합한다. 용리액의 일부를 취한 후 추출 및 역추출 과정은 2.2.1의 산 침출 방법과 동일한 방법으로 수행하였다. 역 추출 후 수층의 일부를 취하여 cocktail 이 들어 있는 액체섬광계수기 측정용 관에 넣고 30 분간 ^{129}I 의 β 방사능을 측정하였다.

4) 수지흡착 방법에 의한 모의 농축폐액의 전처리

^{129}I 가 들어있는 붕산수에 요오드의 운반체로서 KI 와 2.5 g의 음이온수지 (AG 1 x2, 50-100 mesh)를

각각 넣고 pH를 4, 7 및 10으로 조절한 다음 자석젓게로 저어주면서 12시간동안 흡착시키고 whatman #42 여과지로 여과한다. 여액은 버리고 수지를 지름 $\phi = 0.8$ cm 폴리에틸렌 깔럼에 충전시키고 2,2,3의 깔럼용리 방법과 동일한 방법으로 분리한 후 추출하여 cocktail이 들어 있는 액체섬광계수 측정용 관에 넣고 30분간 ^{129}I 의 β 방사능을 측정하였다.

III. 결과 및 논의

가. 질산 및 NaClO의 농도에 따른 요오드의 회수율

전처리 후 산화된 요오드를 선택적으로 분리, 회수하기 위하여 극성의 $\text{IO}_3^- (\text{IO}_4^-)$ 를 비극성 요오드(I_2)로 환원시킨 다음 CCl_4 로 추출하기 위한 질산과 NaClO의 최적농도를 조사하였다. 산화 및 환원제에 의한 산화/환원반응이 수소의 농도에 좌우되기 때문에 용해용액의 질산농도를 0.3~1.5 M 범위에서 요오드의 회수율을 측정하였으며 그 결과를 그림 1에 나타내었다. 그림 1에서 보는 바와 같이 추출에 적합한 질산의 농도는 0.3~1.2 M이 적당하였으며 농도가 낮을 경우 회수율은 떨어지는 것으로 나타났다. 그림 2는 요오드의 침출에 적합한 농도를 알아보기 위하여 NaClO의 농도에 따른 요오드회수율을 측정한 결과이다. NaClO의 농도를 0.9~3.8%로 변화 시키면서 요오드의 회수율을 측정한 결과 0.9~2.7%가 요오드의 침출에 적합한 농도로 나타났다.

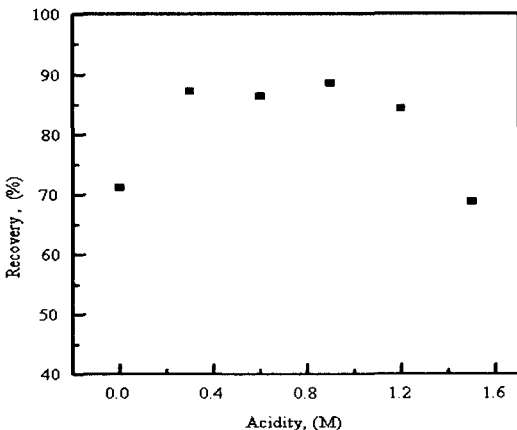


Fig. 1. Effect of acidity on the recovery of iodide

나. 요오드의 정량

1) 이온크로마토그래피에 의한 요오드의 측정

요오드의 분리과정에서 역 추출된 수용액 일부를 취하여 이온 크로마토그래프의 분리관에 주입시키고 용리액으로 0.08 M NaCl 용액을 1 mL/min의 유속으로 흘려보내면 그림 3에서 보는 바와 같이 약 2분 후 HSO_3^- 의 피이크가, 3분 후 NO_3^- 의 피이크가 나타났다. 곧 이어 6분 후에는 I^- 의 피이크가 나타나므로 용액 속에 함유되어 있는 여러 성분에 방해받지 않고 정량할 수 있음을 알 수 있었다. 표 1에 이온 크로마토그래프의 분리조건과 그림 4에 이온 크로마토그래피에 의한 I^- 의 표준점정곡선을 나타내었다.

2) 액체섬광계수기를 이용한 ^{129}I 측정

표준물로 첨가하는 ^{129}I 의 핵종의 방사능을 측정하기 위해선 사용하는 방사선 계측기의 계측효율의 산출이 매우 중요하다. ^{129}I 의 방사능을 측정하기 위하여 채택한 액체섬광계수기의 경우 시료의 매질에 따라 소광(quenching)의 정도가 변하게 되므로 소광효

Table 1. Ion chromatographic conditions for the analysis of iodide.

Parameter	Condition of system
Chromatographic system	Dionex Series 4500i
Analytical column	Dionex IonPac AS4A-SC (4 × 250 mm, 20 $\mu\text{eq}/\text{column}$)
Guard column	Dionex IonPac AG4A-SC(4 × 50 mm)
Eluent	0.8 M NaCl
flow rate	1.0 mL/min.
Sample loop	50 μL
Detection wavelength	UV 226 nm.

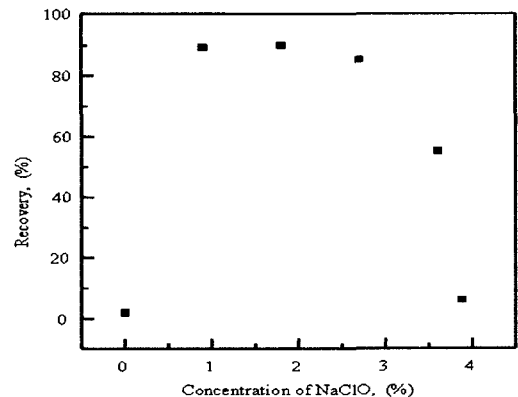


Fig. 2. Effect of concentration of NaClO on the recovery of iodide

과에 따른 계측효율을 보정해 주어야 한다. 먼저 액체섬광계수에 대한 성능 및 바탕 값을 보정해 주기 위해 소광되지 않는 표준바탕체 (PPN6008511, PACKARD)를 이용하여 ^3H (0~18.6 keV) 및 ^{14}C (0~156 keV)의 영역에서 각각 30분간 측정 후 측정기에 대한 바탕 값을 보정해주었다. 매질에 대한 소광효과를 보정하기 위해 일정량의 표준 요오드 (^{129}I =2587 Bq/mL)에 소광제를 증가해 가면서 QIP(Quenched Index Parameter) vs. 계측효율을 측정하여 quenching correlation 곡선을 작성하였다. 소광제가 들어있지 않았을 때 QIP값은 484 tSIE(transformed spectral index of external standard)였고 이때의 계측효율은 96.2%였으며 그 결과를 그림 5에 나타내었다. 표준 ^{129}I 에 매질인 0.1

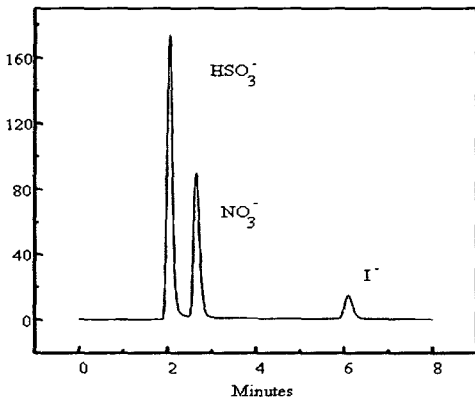


Fig. 3. Ion chromatogram of iodide in 0.1M NaHSO₃

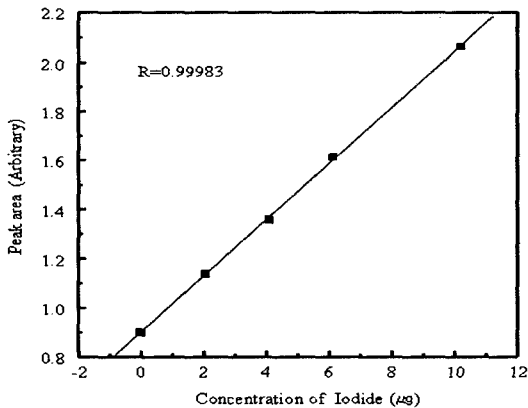


Fig. 4. Calibration curve of iodide in 0.1 N NaHSO₃ with standard addition method

N NaHSO₃의 양을 증가해 가면서 측정하였다. 일반적으로 매질의 농도가 진할수록 소광에 의하여 tSIE 값이 낮게 되어 계측효율이 떨어지게 되나 본 실험의 경우 측정된 QIP는 484~ 499 tSIE로서 95%의 계측효율을 나타내었으며 매질에 의한 소광으로 계측효율의 저하는 없는 것으로 생각된다.

3) 잡고체 및 수지중의 요오드 회수율

요오드회수율을 결정하기 위한 시료의 전처리 방법 및 분석과정에 대한 흐름도를 그림 6에 나타내었다. 그림 6에서 보는 바와 같이 시료의 유형에 따라 각각 다른 방법으로 전처리 한 다음 같은 방법으로 추출 및 역추출하여 이온크로마토그래피나 액체섬광계수기로 측정한다. 방사성폐기물 중 요오드의 회수율을 측정하기 위해 분석과정의 흐름도에 따라 산 침출법과 알칼리 용융법, 음이온 교환수지 흡착용리법 등으로 전처리한 후 액체섬광 계수기로 ^{129}I 의 β 방사능을 측정하였으며 그 결과를 표 2에 나타내었다. 표 2에서 보는 바와 같이 1.8% NaClO를 이용하여 침출시킨 후에 회수율을 측정된 결과 잡고체 및 수지 중의 요오드 회수율은 74.3%(RSD, 2.2%)과 40.4%(RSD, 25.2%)를 각각 나타내었다. 수지의 경우 수지 내에 흡착된 요오드가 부적합한 침출 조건으로 용출이 되지 않아 회수율이 낮게 나타나는 것으로 생각된다. 수지를 용융제(KOH) 및 산화제(KNO₃)를 가하여 용융시킨 후 분리하여 측정하였을 때 평균 회수율은 87.7% (RSD, 0.9%)로서 침출법보다 훨씬 좋은 결과를 얻을 수 있었다. 수지에 요오드를 흡착시킨 후 수지를 칼럼에 충전하고 NaClO를 가하여 분리한 후 회

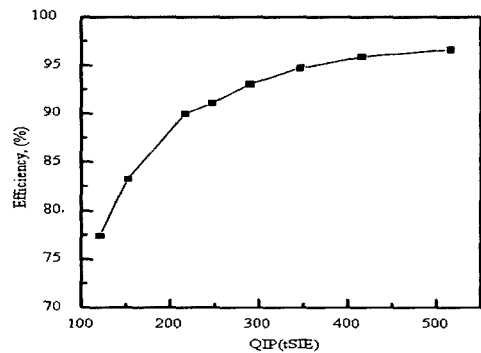


Fig. 5. The quench correction curve of ^{129}I in 0.1 N NaHSO₃

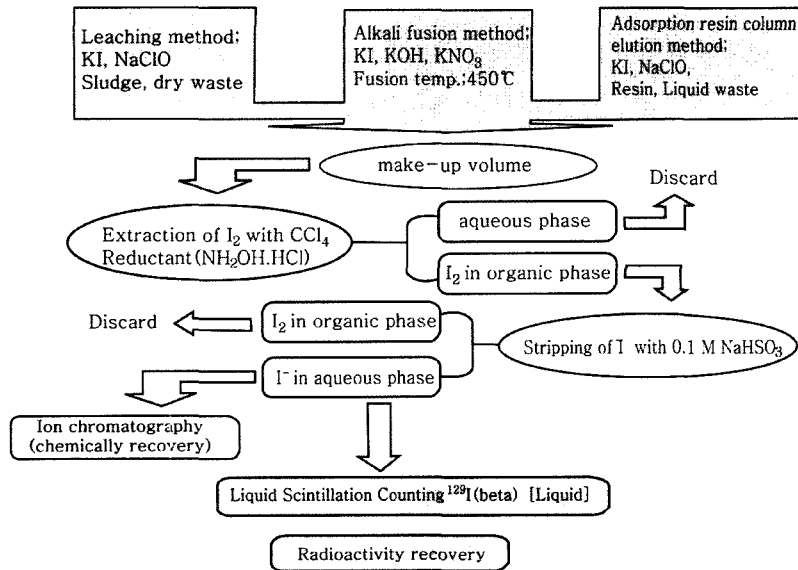


Fig. 6. Flowsheet of the analytical procedure for the measurement of ¹²⁹I

Table 2. Comparison of sample treatment for iodide in simulated radioactive waste sample by ionchromatography

No.	Sample treatment method			
	Leaching(1)		Alkali fusion(2)	Column elution(3)
	dry waste	Resin	Resin	Resin
1	72.4	52.2	87.6	87.1
2	75.8	34.5	86.9	85.4
3	74.6	34.5	88.6	86.6
Ave. (%)	74.3	40.4	87.7	86.3
RSD, (%)	2.2	25.2	0.9	1.0

- 1) 1.8% NaClO as a leaching agent
- 2) KOH as a fusion agent, KNO₃ as a oxidant of iodide
- 3) AG 1 x 2, 50-100 mesh Cl⁻ form, Adsorption time: 12 hr

수율을 측정된 결과 평균 86.3%(RSD,1.0%)로서 알칼리용융 방법과 비슷한 회수율을 나타내었다. 수지의 경우, 회수율 측면에서 알칼리용융법이 가장 좋은 회수율을 나타내었으나 방사성시료의 특성상 용융에 필요한 전기로의 방사선 차폐와 공기오염방지 시설 등을 설치해야하는 등 제한요소가 있을 수 있다. 따라서 분리 공정이 간단하고 방사선차폐가 비교적 쉬우면서도 요오드회수율이 알칼리 용융방법에 의한 회수율과 비슷한 결과를 나타내는 칼럼용리방법이 유리하다. 잡고체의 경우 방사능의 세기가 비교적 낮고 요오드의 함량도 매우 낮을 것으로 예상됨에 따라 많은 양의 시료를 처리해야하는 연소 및 알칼리 용융

Table 3. Adsorption of iodide on anion exchange resin (1)

Buffer solution	Iodide adsorbed(2), (%)
pH 4, phthalate	83.9
pH 7, phosphate	92.5
pH 10, carbonate	88.6

- (1) AG 1 x 2, 50-100 mesh Cl⁻ form
- (2) Adsorption time: 12 hr

법 등은 적당하지 않고 칼럼에 의한 용리방법도 적용하기 어렵기 때문에 NaClO를 이용한 침출방법이 유리할 것으로 생각된다.

4) 모의 농축폐액 중 ¹²⁹I의 회수율

pH 4,7 및 10 완충용액속의 음이온수지에 요오드의 흡착정도를 알아보기 위해 용리액의 일부를 취하여 ¹²⁹I의 회수율을 측정하여 그 결과를 표 3에 나타내었다. pH 변화에 따라 83.9~92.5%의 회수율을 나타내었고 pH 7(phosphate buffer)에서 가장 높은 회수율을 나타내었으며 F. Verzezen[14]등의 실험결과와 유사한 회수율을 나타내었다. 농축폐액 중에 함유되어 있는 붕소가 요오드의 분리 및 회수율 결정에 미치는 영향을 알아보기 위해 모의 농축폐액에 붕소를 0~1200 μg/mL를 가한 후 pH를 7로 유지하고 같은 방법으로 흡착시킨 다음 요오드의 회수율을 측정하였으며 그 결과를 표 4에 나타내었다. 평균 회수율은

87.5% (RSD,2.0%) 로서 알칼리 용융방법에 의한 요오드의 회수율 87.6%(RSD,0.9%)과 거의 같은 수율을 나타내는 것으로 보아 1,200 µg/mL 이하의 붕소는 요오드의 분리 및 회수율 결정에 영향을 주지 않는 것으로 판단된다.

5) 현장시료에 대한 ¹²⁹I 회수율 측정 적용

모의 방사성 시료에 대한 요오드의 분리 및 회수율 결정에서 확립된 시료의 전처리 방법으로 현장시료(발전소배출 수지)중의 ¹²⁹I를 분리하여 회수율을 측정하였다. 방사성 시료인 점을 고려하여 차폐가 비교적 용이하고 분석 조작이 쉬운 방법으로서 알칼리 용융법보다는 칼럼용리법을 선택하여 분리하였다. 회수율의 확인방법으로 현장시료중의 일부에 표준 ¹²⁹I를 첨가하여 용출되어 나온 요오드를 추출 및 역추출하여 ¹²⁹I로부터 방출되는 β방사능을 측정하여 회수율을 비교하였으며 그 결과를 표 5에 나타내었다. 표 5에서 보는 바와 같이 모의 방사성폐기물 시료에 대한 요오드회수율이 86.3%(RSD,1.0%)였고 현장 시료에 대한 요오드회수율이 86.7%(RSD,1.2%)로서 향후 배출 될 고농도 폐수지에 대한 전처리 및 분리방법으로서 칼럼용리 방법의 적용이 가능하다고 생각된다.

Table 4. Analytical results of ¹²⁹I in simulated waste water contained boric acid by column elution method with adsorption of ¹²⁹I on anion resin*

H ₃ BO ₃ (as a boron) µg/mL	Intensity of ¹²⁹ I(dpm)		
	Predict	Found	Recovery,(%)
0	377.5	337.1	89.2
240	377.5	329.6	87.3
480	377.5	333.7	89.4
720	377.5	321.3	85.1
1200	377.5	327.7	86.8
Ave. (RSD,%)			87.5(2.0)

* AG 1 x 2, 50-100 mesh Cl⁻ form, Adsorption time : 12 hr

Table 5. Comparison of recovery of ¹²⁹I in simulated and real radio-active waste sample by LSC

simulated radioactive waste(1)	real radioactive waste(2)
87.1	88.2
85.4	85.9
86.6	88.1
-	86.7
86.3%(RSD,1.0%)	87.2%(RSD,1.2%)

(1) fresh mixed resin + STD ¹²⁹I

(2) used mixed resin + STD ¹²⁹I (from nuclear power plant)

IV. 결론

요오드의 분리 및 정량을 위한 알맞는 질산의 농도와 NaClO의 농도를 조사한 결과 분리에 적합한 질산의 농도는 0.3~1.2 M 이며, NaClO의 농도는 0.9~2.7%였다. 잡고체 및 수지를 침출법으로 분리하여 회수율을 측정한 결과 74.0%(RSD,2.3%), 40.4%(RSD, 25.2%)의 회수율을 각각 나타내었다. 수지중의 요오드를 알칼리 용융방법과 칼럼용리방법으로 분리하여 요오드의 회수율을 비교한 결과 87.7, 86.3%의 회수율로서 침출법보다 좋은 회수율을 나타내었다. 모의 농축폐액 중 ¹²⁹I를 수지흡착 방법으로 분리 후 회수율을 측정한 결과 pH 7 (phosphate buffer)에서 가장 좋은 회수율을 얻었다. 모의 농축폐액 중 붕소가 요오드 분리에 미치는 영향을 조사한 결과 1,200 µg/mL 이하의 붕소는 ¹²⁹I의 회수율 측정에 영향을 미치지 않았다. 원전 내 현장시료에 대한 ¹²⁹I의 회수율 측정결과와 비방사성 시료의 회수결과와 유사한 결과를 나타내었다.

참고 문헌

1. E. H. P. Cordfunke and R. J. M. Konings, "The release of fission products from degraded UO₂ fuel:Thermochemical aspects," Journal of Nuclear Materials, 201, pp. 57-69(1993).
2. T. Sakurai, A. Takahashi, N. Ishikawa, Y. Komaki, M. Ohnuki and T. Adachi, "The iodine species and their behaviour in the dissolution of spent-fuel specimens," UCLAR TECHNOLOGY, 85, pp. 206-212 (1989).
3. N. Boukis and E. Henrich, "Iodine-129 Analysis in Nuclear Fuel Solutions," Radio Chimica Acta, 54, pp. 103-108(1991).
4. L. C. Bate and J. R. Stokely, "Iodine-129 separation and determination by neutron activation analysis," Journal of Radioanalytical Chemistry, 72(1/2), pp. 57-570(1982).
5. D. Geithoff and V. Schneider, "Prevention of the

- Volatilization of fission Iodine in the dissolution of UO₂ samples," NUCLEAR RESEARCH CENTER, KARLSRUHE, KFK-258(1964).
6. N. Lavi, "A fast radiochemical procedure for separating iodine from fission products," Journal of Radioanalytical Chemistry, 20, pp. 41-49(1974).
 7. D. M. Ivak, LA. Waldman, "'Iodine and Cesium in oxide fuel pellets and Zircaloy-4 cladding of irradiated fuel rods", (LWBR Development Program) WAPD-TM-1394 (1979).
 8. L. C. Bate and J. R. Stokely, "Determination of ¹²⁹I in mixed fission products by neutron activation analysis", ORNL/TM-7449(1980).
 9. H. Kamioki and K. Hoizumi, "Determination of radioactive iodine isotopes in the ⁹⁹Mo produce by distillation," JAERI-M 8070(1979).
 10. J. H. Chao, C. L. Tseng, C. J. Lee, C. C. Hsia, S. P. Teng, "Analysis of ¹²⁹I in radwaste by NAA, "Applied Radiation and Isotopes, 51, pp. 137-143(1999).
 11. J. C. Clayton and J. M. Riddle, "Some studies on the oxidation states of fission product Iodine(¹²⁹I) in irradiated UO₂," WAPD-TM-851(1969).
 12. Y. Bichsel and Urs von Gunten, "Determination of Iodide and Iodate by Ion chromatography with post column reaction and UV/Visible detection," Anal. Chem., 71, pp. 34-38(1999).
 13. E. Albert, Jr. Symonds, "Absorption system for radioactive Iodine" , Engineering and Equipment, (TID-450, 16th Ed,) DP-646(1961).
 14. F. Verrezen and C. Hurtgen, "The measurement of Technetium-99 and Iodine-129 in waste water from pressurized nuclear-power reactors," Appl.Radiat.Isot. 43(1/2). pp. 61-68(1992).