

## 파라핀고화 농축폐액의 $^{129}\text{I}$ 분석 Determination of $^{129}\text{I}$ in the paraffin solidified evaporated bottoms

박순달, 김정석, 한선호, 송규석, 지광용  
한국원자력연구원 대전시 유성구 덕진동 150 번지  
[nsdpark@kaeri.re.kr](mailto:nsdpark@kaeri.re.kr)

원자력발전소의 수처리과정에서 발생하는 농축폐액은 주로 시멘트 고화처리 되었으나, 1990년 대 중반부터 파라핀 왁스에 의한 고화처리가 시도되었다. 파라핀고화체는 시멘트고화체에 비해 비중이 약 2배 정도 낮고, 용기당 무게가 가벼우며 폐기물의 혼합비율을 높일 수 있는 장점이 있다. 그러나 시멘트고화체에 비해 열과 기계적강도가 낮은 단점이 있다. 파라핀은  $72^{\circ}\text{C}$  이상의 온도에서 녹기 시작하며 온도 상승에 따라 점도가 낮아져 액체로 된다. 파라핀 왁스는 물에 불용성이며, 열을 가하지 않고도 일정한 압력하에서 변형이 일어나는 열가소성수지이다. 파라핀고화체내의 파라핀은 농축폐액의 봉산과 화학적 결합을 하지 않고 단지 혼합 상태로 존재한다. 표 1에 농축폐액 파라핀고화체의 특성에 대해 나타내었다.

$^{129}\text{I}$ 는 반감기  $1.57 \times 10^7$ 년의 초장수명 핵종으로  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{14}\text{C}$  및  $^3\text{H}$ 과 함께 중저준위방사성폐기물 인도규정에서 반드시 측정해야 하는 핵종으로 분류되어 있다.  $^{129}\text{I}$ 는 약한 베타입자( $E_{\max}=0.189$  MeV), 약한 감마선(39.6 keV) 및 엑스선을 방출한다. 따라서  $^{129}\text{I}$  측정은 대부분 대표 시료의 실험실 분석을 요구한다.  $^{129}\text{I}$ 의 분석방법에는 Accelerator Mass Spectrometry(AMS), Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry(ICP-MS), Neutron Activation Analysis(NAA), Liquid Scintillation Counting(LSC),  $\gamma$ -spectrometry 및 Gas Proportional Counting(GPC)와 같은 여러 가지 방법이 있다. 측정방법의 선택은 실험실에서 이용 가능한 시설, 장비, 요구되는 분석한계 및 분석경비 등을 고려해야 한다.

본 연구에서는 파라핀고화체내  $^{129}\text{I}$  분석을 위해 고가의 장비를 사용하지 않는 AgI 침전 분리-GPC법을 채택하였다. 50 mL의 유리 비커 4개에 각각 파라핀 고화체 시료 약 10 g, 음이온교환수지(AG 1X2, 50-100 mesh, chloride form) 2.5 g 및 KI(50 mg I /mL) 용액 0.2 mL를 가하였다. 여기에 pH 7의 완충용액 10 mL를 가하고 시계접시를 덮은 후 핫플레이트 상에서 파라핀이 녹을 정도의 온도로 12 시간 이상 이온교환수지와 접촉시켜 iodide를 이온교환수지에 흡착시켰다. 용해된 상태의 파라핀고화체를 50 mL 플라스틱 칼럼에 옮기고 50 mL의 증류수로 3회 세척하여  $^{129}\text{I}$  이외의 모든 핵종을 제거하였다. 이온교환수지에 흡착된 iodide를 4% NaOCl로  $\text{IO}_3^-$ 로 산화, 용출시켰다. 이것을 진한 질산 및 hydroxylammonium chloride( $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$ )를 사용하여  $\text{I}_2$ 로 환원시켜  $\text{CCl}_4$ 로 추출하였다. 수집한  $\text{CCl}_4$ 를 0.1 M- $\text{NaHSO}_3$  5 mL를 가하여 3 분간 추출하였다. 수층에 진한 질산 0.5 mL, 0.1 M- $\text{AgNO}_3$  2 mL를 차례로 가하여 연두색의 AgI 침전을 생성시켰다. 이것을 회수, 정제, 건조 후 무게 달아 화학적회수율을 측정하고 Gas Proportional Counter(GPC)로 베타 계수를 측정하여  $^{129}\text{I}$ 의 농도를 구하였다.

AgI에 의한 요오드분리는 AgI가 다른 할로젠 원소(X)의 은침전물( $\text{AgX}$ )에 비해 용해도가 낮다는 점을 이용한다. 본 실험에서 AgI 침전 생성시 방해할 수 있는 음이온은  $\text{Cl}^-$ 와  $\text{S}^{2-}$ 이다.  $\text{Cl}^-$ 는  $\text{CCl}_4$  추출과정에서 유입될 수 있으며  $\text{S}^{2-}$ 는 과량의  $\text{NaHSO}_3$  사용에 의해 남아 있는 것이다. 본 실험조건에서는 0.1 M- $\text{NaHSO}_3$  5 mL 사용시 AgI 침전물에서 S 성분이 검출되지 않았다. 그러나 0.5 M- $\text{NaHSO}_3$  5 mL 사용시 AgI 침전에서 높은 농도의 S가 검출되었다. 또한 최종 침전물 생성시 진한질산 0.2 mL를 가했을 때 생성된 AgI의 회수율이 이론값보다 높았다. 이것은 AgCl의 공침에 의한 것이었다. 따라서 추출한  $\text{CCl}_4$ 를 묽은 질산(95:5) 10 mL로 충분히 세척하고 세척된 용액에서 AgCl 침전의 생성을 확인하여야 한다. 최종 AgI 생성시 진한 질산을 0.5 mL로 약간 과량

가함으로써 염소와 황의 방해를 방지 할 수 있었다. 침전에 의한 순수한 I<sup>-</sup>의 분리는 염의 용해도 적을 이용하므로 pH 조절이 매우 중요하다.

음이온교환수지에 대한 iodide의 흡착은 중성 혹은 약알칼리성(pH 7-8)의 범위에서 가장 효과적이다. 이 조건은 가압경수로형 원자로에서 발생된 냉각재 폐기물 시료의 pH와 비슷하다. 본 연구에서 사용한 파라핀고화체의 평균 무게는 약 11 g, 평균 화학적회수율 및 <sup>129</sup>I 회수율은 약 70%였다. 분석한 파라핀 시료 전체의 평균 MDA는 0.036 Bq/g이었으며, 평균측정값은 0.032 Bq/g이었다. 파라핀고화체의 평균 시료 사용 무게가 시멘트고화체 시료의 약 2배 이상 높았기 때문에 MDA 값을 그 만큼 낮출 수 있었다. 미국 10CFR61의 규정에 의하면 <sup>129</sup>I의 MDA는 30 Bq/g(0.8 nCi/g), 측정법은 GPC, 회수율 측정은 중량법으로 규정되어 있다. 고가 장비인 Mass acceleration spectrometry(MAS)를 사용하면 중저준위방사성폐기물중 <sup>129</sup>I를 약 0.00004 Bq/g(10E-6 nCi/g)까지 측정 가능한 것으로 알려져 있다. 어떤 시료의 분석법 선택시 시료의 특성에 적합한 분석한계의 제공여부, 분석절차의 효율성 및 경제성이 고려되어야 한다. 본 연구에서 확립한 AgI-GPC 측정법은 파라핀고화체내 <sup>129</sup>I의 일상분석에 적합한 것으로 사료된다.

Table 1. Characteristics of paraffin solidified concentrated bottom waste

폐기물 종류	용기종류	종류	비중	파라핀량 (kg)	폐기물량 (kg)	혼합비율 (w%)	포장물 최대 무게 (kg/용기)
농축폐액	철재드럼	파라핀	0.783	60	152	253	250
			0.92	80	150	188	250