

수용액 중 방사성 핵종 정량(Cs, Tc-99, Pu, U)을 위한 전처리 방법

표형열, 김영복, 송병철, 이명호, 최광순, 한선호
 한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045
 nhypvo@kaeri.re.kr

1. 서론

수용액 중에서 Cs, Tc-99, Pu, U 등의 존재를 알기 위해서는 수용액을 가능한 한 적은 양을 이용하여 가능한 한 각각의 핵종을 순차적으로 정량할 필요가 있다. 이를 위하여 Cs는 인수용액 자체를 감마 측정하여 정량하고 Tc-99, Pu, U 는 수용액을 염산 산성 후 Fe 화합물을 넣고 다시 암모니아를 가하여 Fe(OH)₂ 공침으로 Tc-99, Pu, U를 수용액으로부터 분리 분석하는 방법을 검토하였다.

2. 본론

2.1 실험 및 방법

2.1.1 1, 2 차 수용액 전처리 실험

ASTM -3865-90¹⁾의 물중에서 Pu 분석방법을 참고하여 1차 예비실험을 하기 와 같이하였다. 증류수 500mL를 1L 유리비커에 넣고 75mL C-HNO₃를 첨가하여 산성화 한 후 Re 10mg,

B 40mg, Cs 10mg, U 1.1mg 을 넣고, 60°C에서 1시간 가열 후 1mL ferric chloride carrier 용액 (50mg Fe)을 넣고 10 분간 저어줌. 저어주면서 Fe-hydroxide 침전이 보일 때 까지 진한 암모니아용액을 가하고 용액의 pH는 pH paper를 이용하여 9-10을 유지하여 저어준 다음 침전이 가라앉도록 하루저녁 방치함. 맑은 상등액은 조심스럽게 버리고 남아있는 용액은 원심 분리(2500 rpm x 10min)하여 제거함. 침전물은 소량의 진한질산 (5mL 정도면 가능함)으로 녹이고, 증류수로 20mL 로 하여 ICP-AES 측정하여 각 첨가원소들의 회수율을 구하였다.

2.1.2 3 차 수용액 전처리 실험

증류수 500mL 를 1L 유리비커에 넣고 75mL C-HNO₃를 첨가하여 산성화 한 후 Tc-99 (240 Bq), B 40mg, Cs 10mg, U 1.1mg 을 넣고, 60°C

에서 1시간 가열 후 1mL ferric chloride carrier 용액 (50mg Fe)을 넣고 10 분간 저어줌. 저어주면서 Fe-hydroxide 침전이 보일 때 까지 진한 암모니아용액을 가하고 용액의 pH는 pH paper를 이용하여 9-10을 유지하여 저어준 다음 침전이 가라 앉도록 하루저녁 방치함. 맑은 상등 액은 조심스럽게 버리고 남아있는 용액은 원심 분리(2500 rpm x 10min)하여 제거함. 침전물은 소량의 진한 질산 (5mL 정도면 가능함)으로 녹이고, 증류수로 20mL 로 하여 회수율을 측정하였다.

2.1.3 4 차 수용액 전처리 실험

Re/Tc-99 회수율을 증가시키기 위해 논문²⁾참고하여 ,0.7g/L Fe(II)SO₄. 7H₂O, 0.2g/L Fe(III)Cl₃. 6H₂O를 넣어 Re/Tc-99를 환원시켜 Fe 공침을 시켜 회수율 측정하였다.

2.1.4 5, 6 차 수용액 전처리 실험

증류수 500mL 를 1L 유리비커에 넣고 U (20ug NU, 1Bq), Tc-99 (24.77 Bq), Pu-242 (1Bq) 를 첨가하고, 5 mL C-HCl를 첨가하여 산성화 (pH 1)하고 1 시간 저었다. 0.35g Fe(II)SO₄. 7H₂O, 0.25g Fe(III)Cl₃. 6H₂O를 넣고 20분간 저어준 후 Fe-hydroxide 침전(검은 색)이 보일 때 까지 진한 암모니아용액 (25%)을 가하여 용액의 pH는 pH paper를 이용하여 9-10을 유지하며 30 분 정도를 더 저어준 다음 침전이 가라앉도록 3 시간 방치 후 맑은 상등 액은 조심스럽게 버리고 원심 분리하여 Fe-ppt를 원심 분리관에 모아 진한 질산을 첨가하고 저은 가열하여 Fe-ppt 를 녹이고 Tc-99는 LSC, U/Pu는 UTEVA³⁾를 사용하여 분리 후 회수율을 측정하였다.

2.2 결과

실험결과 각 첨가원소들의 회수율은 1, 2차: Re (0.3, 0.7 %), U (44, 92.5%), B (1.7, 2.7%) 이었고, 3차 회수율은 Tc-99의 회수율이 1.8% 이었다. 4차 회수율은 Re (0.28%), Tc-99 (95%), U

(< 95%) 이었다. 상기 실험결과를 참조하여 만든 실험방법을 5, 6차에 적용결과 Tc-99, Pu, U의 회수율은 90% 이상으로 좋은 결과를 얻었다.

Radiochim. Acta 90. 81-85 (2002).

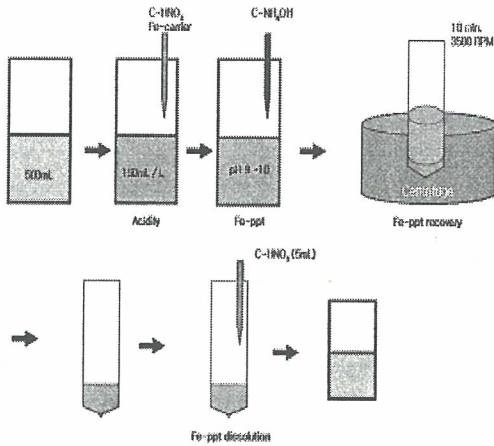


Fig. 1. Flow sheet of pretreatment

3. 결론

수용액 중에서 Cs, Tc-99, Pu, U 등의 함량을 알기 위해서는 가능한 한 적은 양의 용액을 이용하여 가능한 한 각각의 핵종을 순차적으로 정량할 필요가 있다. 이를 위하여 Cs은 인수용액 자체를 감마 측정하여 정량하고 Tc-99, Pu, U 는 수용액을 염산 산성 후 Fe (III) 화합물을 넣어 Tc-99를 환원시키고 암모니아를 가하여 Fe(OH)₂ 공침으로 Tc-99, Pu, U를 수용액으로부터 분리 분석하는 방법을 실험으로 확인하였다.

4. 참고문헌

- [1] ASTM. D-3865-90 "Standard test method for Plutonium in water".
- [2] E. Holm and J. Rioseco. "Determination of ⁹⁹Tc in environmental samples" Nuclear Instruments and Methods in Physics Research 223 (1984) 204-207.
- [3] A. Morgenstern, C. Apostolidis, R. Carlos-Marquez, K. Mayer and R. Molinet "Single-column extraction chromatographic separation of U, Pu, Np and Am".