

## 백금족 원소 측정을 위한 고방사성 세슘 제거 방법 연구

최광순, 김정석, 김영복, 이창현, 박용준, 송규석  
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045  
nkschoi@kaeri.re.kr

### 1. 서론

사용후핵연료 이용 재가공 핵심기술 개발과제는 I 및 Tc과 같은 장반감기 핵종이나 Cs 같은 고방열 및 고방사능 핵종 그리고 Mo, Rh, Ru 및 Tc과 같은 전해정련 공정에 부담을 주는 원소를 제거할 목적으로 고도전처리산화공정에 대한 연구를 수행하고 있다. 사용후핵연료를 고온에서 산화시킬 때 휘발성 핵종을 포집하기 위하여 3 종류의 필터 즉 fly ash 필터, 칼슘 필터 및 AgX 필터를 앞의 순서로 조합하여 사용하고 있다. Fly ash 필터는 Cs을, 칼슘 필터는 Mo, Rh, Ru 및 Tc을 그리고 AgX 필터는 I를 포집하기 위하여 사용하였다.

본 연구팀은 칼슘 필터로 포집한 Mo, Rh, Ru 및 Tc을 감마, 베타 및 ICP-AES로 측정하기 위하여 칼슘필터를 용액화하는 방법을 확립한바있다. 즉, 시료 0.05 g을 마이크로파용해장치와 혼합산(염산-질산-불산)을 부피비로 4:1:0.3 비율로 13.25 mL을 사용하여 투명한 용액으로 만들었다. 따라서 사용후핵연료 중 Mo, Rh, Ru 및 Tc 같은 휘발성핵종을 포집한 칼슘 필터를 이미 확립한 앞의 방법을 적용하여 용해하려고 하였으나, 시료의 방사능이 300 mSv/hr로 너무 높아 glove box 나 후드에서 취급할 수 없었다. 따라서 화학학셀 안에서 칼슘 필터를 환류장치와 1:1 질산을 사용하여 침출하였다.

침출한 용액을 감마분광기로 측정한 결과 Cs-134 및 Cs-137만 검출되고 다른 핵종은 검출되지 않았으나, 침출한 칼슘 필터를 증류하여 응축된 용액을 감마분광기로 측정한 결과 Ru-106이 검출되었다. 그러나 침출한 용액을 ICP-AES로 측정한 결과 Mo만 검출되었고 Ru은 검출되지 않았다.

본 연구는 사용후핵연료를 취급하여 방사능의 대부분을 세슘이 차지할 경우 감도가 좋은 감마분광기로 백금족 원소의 방사성 핵종을 측정할 때 스펙트럼 간섭을 일으키는 세슘의 제거 방법을 조사하였다. Ammonium phosphotungstate는

세슘 제거에 우수한 것으로 알려져 있으며, 본 연구의 공동저자는 실리카겔에 ammonium phosphotungstate를 분산시켜 무기이온교환체를 제조하여 세슘이온의 흡착특성을 발표하였으므로[1], 이 무기이온교환체를 사용하여 세슘의 제거율과 Mo, Pd, Rh, Re 및 Ru의 흡착률을 실험한 다음 방사성 시료에 적용 가능성을 확인하고자 하였다.

### 2. 본론

#### 2.1 실험

실리카겔에 ammonium phosphotungstate을 분산시켜 제조한 무기이온교환체 중의 ammonium phosphotungstate  $\{(NH_4)_3PW_{12}O_{40}\}$ 의 함량은 11%이며, 입자 크기는 100~200 메쉬의 것을 사용하였다. 모의 용액의 조성은 다음과 같이 제조하였다. Cs 1000 mg/L 그리고 Mo, Pd, Re, Rh 및 Ru 각각의 농도는 10 mg/L으로 0.5 M 염산 매질이었다. 무기이온교환체의 무게를 각각 0.1, 0.3, 0.5 및 0.7 g 달아 20 mL 바이알에 넣고 혼합표준용액 1 mL 및 0.5 M 염산 9 mL을 가한 다음 교반기로 30분 동안 흔들여 주었다. 무기이온교환체의 입자 크기가 미세하므로 무기이온교환체가 가라앉은 다음 고체와 액체를 분리할 때 이 무기이온교환체의 입자가 용액으로 이동하는 것을 방지하기 위하여 0.45  $\mu m$  크기의 membrane 필터로 용액만 걸러서 ICP-AES 및 AAS로 측정하였다.

#### 2.2 결과 및 논의

세슘 1000  $\mu g$ 은 7.52 micromole이며, 무기이온교환체 0.1, 0.3, 0.5 및 0.7 g 중의  $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$ 는 각각 3.75, 11.25, 18.75 및 26.25 micromole이다.  $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$ 의 양이 세슘 양보다 작은 0.1 g의 경우, 세슘의 제거율은 97.04%이었으며, 세슘 양보다 많은 0.3, 0.5 및 0.7 g의 경우 세슘의 제거율은 각각 99.97, 99.98 및 99.99%이었다. 한편 Pd, Rh, Re 및 Ru의 흡착률은 표 1과 같이 무기이온교환체의 양과 상관없이 4개 원소 모두 거의 흡착되지 않았다. 한편 무기이온교환체의 양이

0.1 g인 경우 폴리브덴의 흡착률은 88.5%이었으며, 0.3, 0.5 및 0.7 g의 경우 흡착률은 무게 증가와 상관없이 모두 90% 이상이였다. 반면에 무기이온교환체의 양이 0.1, 0.3, 0.5 및 0.7 g으로 증가할수록 용출되는 텅스텐의 양은 41, 500, 940 및 1510  $\mu\text{g}$ 으로 증가하였다. 요약하면 ammonium phosphotungstate의 양이 세슘 양보다 많으면 세슘은 99.9% 이상 제거되는 반면에 Pd, Rh, Re 및 Ru는 거의 흡착되지 않았으며, Mo는 비교적 잘 흡착되었다.

비방사성 용액으로 예비 실험한 결과 세슘은 ammonium phosphotungstate에 잘 흡착되는 반면에 Pd, Rh, Re 및 Ru는 거의 흡착되지 않았으므로 방사성시료에 적용하였다. 무기이온교환체 0.1 g을 바이알에 넣고 방사선량률이 수 mSv/hr 인 용액 1 mL와 0.5 M 염산 19 mL를 혼합한 다음 30분 동안 흔들어 주었다. 입자가 가라앉은 다음 0.45  $\mu\text{m}$  크기의 멤브레인 필터로 거르고 취한 것과 거르지 않고 취한 각각의 용액을 감마분광기로 측정하였다. 그 결과 세슘 제거 전의 Cs-134 및 Cs-137의 방사능은 각각  $6.66 \times 10^7$  및  $7.85 \times 10^8$  Bq/mL이었다. 무기이온교환체로 세슘을 제거한 다음 여과 유무에 따른 제거율은 각각 99.5%와 98.4%이었다. 또한 여과하지 않은 것을 기준으로 여과하였을 때 세슘의 방사능 세기는 68.6% 감소하였다. 한편 세슘을 제거하기 전에 감마분광기로 검출되지 않았던 침출용액 중의 Ru-106 핵종도 세슘을 제거한 다음 그림 1과 같이 검출할 수 있었다.

Table 1. Removal percentage of the several elements by inorganic ion exchanger

Inorganic ion exchanger (g)	Removal (%)				
	Cs	Pd	Re	Rh	Ru
0.1	97.04	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5
0.3	99.97	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5
0.5	99.98	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5
0.7	99.99	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5

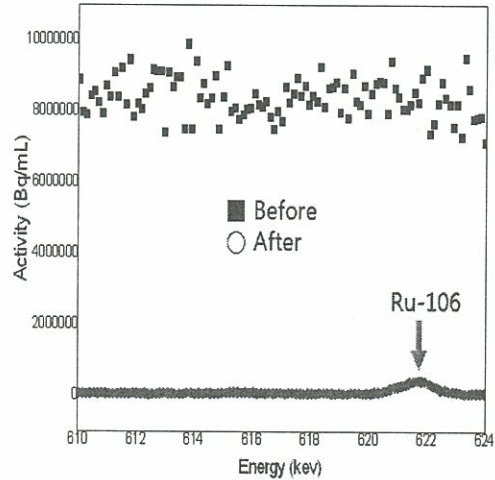


Fig. 1. Gamma spectra of leachate of calcium filter before and after removal of cesium

### 3. 결론

본 연구에서는 감도가 좋은 감마분광기로 Ru-106 방사성핵종을 측정할 때 세슘에 의한 스펙트럼 간섭을 피하기 위하여 세슘을 선택적으로 제거하는 방법을 확립하였다. 무기이온교환체로 세슘을 제거한 다음 용액의 감마선을 측정할 때 세슘을 흡착한 입자의 방사능 세기가 높으므로 미세한 입자가 용액으로 이동하는 것을 방지하기 위하여 여과하여야 한다.

### 4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 출연금 주요사업의 일환으로 수행하였습니다.

### 5. 참고문헌

- [1] 이창현 외, NH<sub>4</sub>PW-실리카겔 무기이온교환체의 제조와 세슘이온의 흡착특성, 대한화학회지, 39(7), 543-551, 1995.