

연동펌프와 Ni-Resin 추출 크로마토그래피 분리관으로 구성된 $^{59,63}\text{Ni}$ 분리 시스템의 신뢰도 평가

이창현, 김민원*, 배영미, 안홍주, 송규석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*(주)액트, 대전광역시 유성구 관평동 705

nchleel@kaeri.re.kr

1. 서론

국내의 원자력발전소에서 발생하는 중·저준위 방사성폐기물을 효율적으로 관리하기 위하여 지난 수년간 비파괴분석이 가능한 ^{60}Co , $^{134,137}\text{Cs}$ 및 ^{144}Ce 와 같은 핵종 재고량으로부터 ^{99}Tc , ^{90}Sr , ^{55}Fe , ^{94}Nb 및 ^{63}Ni 와 같은 규제 핵종들의 재고량을 신속하고 정확하게 평가할 수 있는 척도인자(scaling factor)를 개발해 왔다. 특히 발생원이 다르지만 그동안 한국원자력연구원에서 관리해 오고 있던 다양한 매질의 중·저준위 방사성폐기물에 함유되어 있는 규제 핵종들의 재고량도 함께 평가를 하고 있어서 이와 관련된 시료의 수가 급격히 증가하고 있는 추세다. 이 규제 핵종을 정량하기 위해서는 이 핵종들의 방사선적 특성을 고려하여 시료를 구성하고 있는 매질 성분원소뿐만 아니라 공존하고 있는 다른 핵종들로부터 이 핵종들을 개별적으로 분리한 후 방사능 세기를 측정해야 한다¹. 본 연구를 위하여 2 차에 걸쳐서 이 핵종들의 분리기술을 개발하고 보완하여 왔으나 척도인자의 신뢰도를 높이기 위해서는 가능한 많은 시료들로부터 이 핵종들에 대한 정량 결과를 얻어야 하기 때문에 신속한 분리기술의 개발이 꾸준히 요구되어 왔다. 본 연구에서는 16개의 방사성폐기물 시료로부터 ^{99}Tc , ^{90}Sr , ^{55}Fe 및 ^{94}Nb 을 분리한 후 최종적으로 매질 성분원소와 공존 핵종들로부터 $^{59,63}\text{Ni}$ 을 선택적으로 분리할 수 있는 분리 시스템을 구성하여 $^{59,63}\text{Ni}$ 을 선택적으로 회수할 수 있는 기술을 최적화하고 이를 바탕으로 회수율을 측정하고 신뢰도를 평가하였다.

2. 본론

2.1 분리관 준비

Ni의 선택적 분리를 위해서 폴리프로필렌 재질의 분리관(용량: 8 mL, 높이: 65 mm)에 950 mg의 Ni-Resin (Eichrom, U.S.A.)을 충전하여 사용하였으며 함께 분리되는 미량의 Cu와 Co를 제거

하기 위하여 동일한 규격의 분리관에 5 mL의 음이온교환수지(Bio Rad, AG 1×8, 100~200 mesh)를 충전시켜 사용하였다.

2.2 시약 및 모의 방사성폐기물 용해액

종이, 비닐, 슬러지 및 폐이온교환수지 등과 같은 다양한 매질의 중·저준위 방사성 폐기물의 화학조성을 분석한 후 시약급 금속염과 표준 금속이온 용액(Spex, U.S.A.)을 사용하여 표 1과 같은 조성의 모의 방사성폐기물 용해액을 제조하였다. 또한 회수율 평가를 위하여 Re(2 mg), Sr(3 mg), Fe(20 mg), Nb(20 mg) 및 Ni(2 mg)을 화학운반자로 첨가하였다.

Table 1. Chemical composition of simulated radioactive waste dissolved solution.

Metal	mg	Metal	mg	Metal	mg
Al	3	Co	1	U	1
Ca	7	Mn	1	Zn	4.4
Cr	1.5	Pb	1	Zr	1
Cu	2	Sb	1	Na	40
K	5.5	Ba	1	Mo	1
Li	1	Sn	1	Mg	3.5
Ti	1				

2.3 방사성폐기물 시료로부터 Ni의 분리

그림 1의 절차에 따라 모의 방사성폐기물 용해액에 함유되어 있는 매질 성분원소와 화학운반자로 첨가한 Re, Sr, Fe 및 Nb으로부터 Ni을 분리하였다. 최종 회수한 옥살산 매질의 용출액에는 Ni과 함께 Na, Li, K, Al, Zn, Mn, Ti, Mo, Co, Cu, Zr, Pb, Sn 및 Sb이 일부 존재하고 있으므로 저에너지 감마분광기와 액체섬광계수기로 ^{59}Ni 과 ^{63}Ni 의 방사능 세기를 측정하기 위해서는 매질 성분원소와 특히 ^{60}Co 및 $^{134,137}\text{Cs}$ 으로부터 $^{59,63}\text{Ni}$ 을 선택적으로 분리해야 한다. 음이온교환수지법의 경우 염산매질에서 Ni^{2+} 및 NiCl^+ 로 존재하는 Ni은 염화 음이온 착물을 형성하지 않는 Na, K, Li, Cs, Al 및 Mn으로부터

분리하기 어렵다. 양이온교환수지법은 Ni에 대한 선택성이 작아서 잘 적용되지 않지만 아세트산과 염산 또는 아세트산과 염산과 같은 혼합 매질에서 양이온 착물을 형성하는 Ni은 양이온교환수지에 세게 흡착되기 때문에 Cu, Co, Fe(III), U, Mo, Mn, Cd, Hg 및 Pb 등으로부터의 분리가 가능하다고 알려져 있다². 그러나 실제 실험에서는 Ni을 선택적으로 분리할 수 있는 만족스러운 결과를 얻지 못하였다³. 옥살산 매질의 용액으로부터 Ni을 분리하기 위하여 화학적으로 안정한 담체에 Ni과 반응하여 Ni(DMG)₂ 착물을 형성할 수 있는 dimethylglyoxime을 침윤시킨 Ni-Resin 분리관을 사용하여 Ni을 선택적으로 분리하였다⁴.

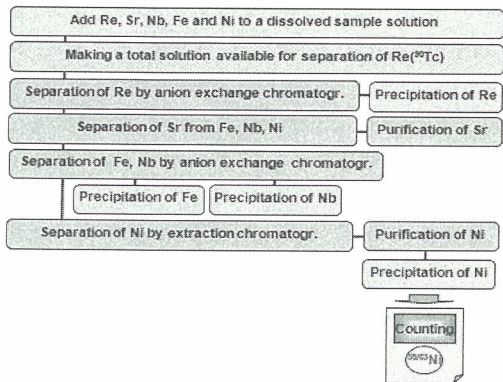


Fig. 1. Separation procedure of Re, Sr, Fe, Nb and Ni added as a chemical carrier.

2.4 Ni 분리시스템

Ni-Resin은 소수성을 띠고 있기 때문에 대기압 아래 자연 흐름법으로는 신속히 용리시키기 어렵다. 대안으로 Eichrom사가 개발한 진공상자를 사용하여 16개의 시료로부터 Ni을 분리해 보았지만 각 분리관의 흐름속도가 일정하지 않아서 신뢰할 수 있는 결과를 얻을 수 없었다. 본 연구에서는 그림 2에서와 같이 80~90 mL의 시료용액(Loading solution)을 넣을 수 있는 16개의 분리관과 용리속도를 빠르고 정확하게 조절할 수 있는 연동펌프(ISMATIC, U.S.A.)로 구성된 분리시스템을 사용하였다. 또한 Ni-Resin에 미량 흡착되는 Co와 Cu로부터 Ni을 신속하게 회수하기 위하여 그림 3과 같이 Ni이 흡착되어 있는 16개의 Ni-Resin 분리관 아래에 음이온교환수지 분리관을 직렬로 연결한 후 9 M HCl을 흘려 넣어 Ni을 선택적으로 회수할 수 있는 정제 시스템을 구성하였다.

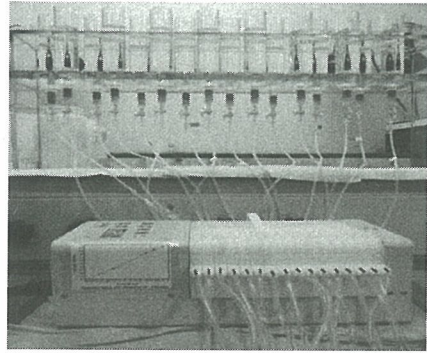


Fig. 2. A separation system composed of Ni-Resin columns and a peristaltic pump.

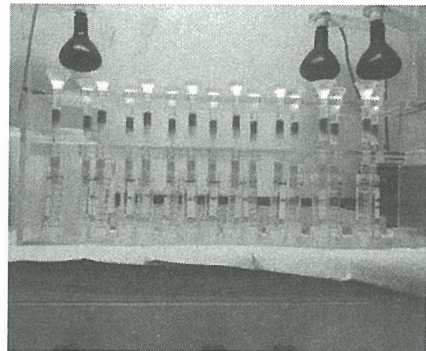


Fig. 3. Purification system composed of Ni-Resin and anion exchange resin columns.

3. 결론

3.1 Ni 분리신뢰도 평가

5 개의 모의 방사성폐기물 용해액을 대상으로 그림 1의 분리절차에 따라 Ni을 분리하고 회수 신뢰도를 평가한 결과 회수율은 92.3±0.8%이었으며 실제 16개의 시료를 대상으로 Ni을 분리할 때 소요되는 시간은 약 7시간으로 Ni의 신속한 분리가 가능하였다.

4. 참고문헌

- [1] Chang Heon Lee, et. al., J. Radioanal. Nucl. Chem., 288, 319(2011).
- [2] J. Korkisch, et al., Talanta, 14, 155, 1967.
- [3] Chang Heon Lee, et. al., J. Korean Radioactive Waste Society, 3(4), 309-317, 2005.
- [4] Chang Heon Lee, et al., Proceedings of the Korean Radioactive Waste Society pp. 401-402, 2011.