

농축폐액 시료 내 핵종분석을 위한 전처리

손세철, 표형열, 최광순, 김영복, 박용준, 송규석
한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

nscsohn@kaeri.re.kr

1. 서론

베타 방사선을 방출하는 방사성 핵종들에 대한 핵종별 방사능 양을 정량적으로 측정하기 위해서는 핵종별 개별 분리가 우선되어야 한다. 본 연구에서는 원전에서 발생하는 농축폐액(CBP) 시료를 대상으로 비휘발성 방사성 핵종을 정량하기 위한 전처리 방법에 대해 검토하였다. 전처리 과정은 농축폐액 시료를 1차 증발 건조시키는 과정을 적용함으로써 동일한 양의 산으로 보다 많은 시료를 전처리할 수 있는 방법을 개발하였다. 농축폐액 중 과량으로 함유하고 있는 보론 원소를 감량시키기 위해, 메탄올, 염산 및 불산을 각각 사용하여 감량되는 정도를 검토하였다. 또한, 최적의 전처리 방법을 실제 시료에 적용하고, 농축폐액 시료 내의 베타선 방출 핵종들을 개별 분리하는데 활용하였다.

2. 본론

2.1 CBP 용액 분말화를 위한 예비실험

2.1.1 밀도 측정

시험에 사용한 CBP 용액을 잘 섞은 후 20 mL 씩 3회 취하여 밀도를 측정하였다. 측정결과 평균값은 1.047 g/mL이고 RSD는 0.19 %이었다.

2.1.2 고형분의 양 측정

CBP 용액 20 mL를 3회 취해서 IR 램프를 사용하여 120 °C에서 증발 건조한 결과, 고형분의 양은 평균 6.64 %이었다.

2.2 농축폐액 분말 실험

핵종분석을 수행할 농축폐액 분말시료의 성분 분석 결과에서 알 수 있듯이, 보론의 함량이 최소한 시료 1 g 당 20 mg이 넘게 존재할 것으로 생각되며, 시료 용액화 후 Fe, Nb, Ni, Tc, Sr 분석

에 크게 영향을 줄 것으로 판단되었다(Table 1 참조). 따라서 과량의 보론 성분을 일차적으로 제거할 필요가 있었으며, 보론을 제거하는 방법으로는 메탄올을 이용하는 방법, 염산을 이용하는 방법, 불산을 이용하는 방법에 대해 검토하였다.

2.2.1 메탄올을 이용한 보론 제거

보론은 산성 매질의 메탄올 용액에서 65 °C 정도로 가열하면 붕산 매질 에스테르 화합물로 휘발하게 된다.

보론 1 g을 휘발시키기 위해서는 12 g 정도의 메탄올이 필요하다. 따라서 유리 비커에 5.4 g의 붕산(보론으로 1 g)과 20 mL의 메탄올을 첨가하고 자석 짓개를 사용하여 저어 주면서 가열하여 보론을 휘발시킨 결과, 보론 제거를 위한 소요시간이 너무 오래 걸리는 단점이 있음을 알 수 있었다. 또한, 인체에도 매우 유해한 메탄올 증기로 인하여 원전 농축폐액 분말 시료의 전처리에는 적용하는 것이 적합하지 않았다.

Table 1. Composition of concentration buttons.

| 원소 | YK-4-CB | UJ-1-CB | UJ-3-CB |
|----|---------|---------|---------|
| B | 19,064 | 17,497 | 14,100 |
| ca | 238 | 1004 | 151 |
| Cu | 25 | - | 27 |
| Fe | 115 | 101 | 13 |
| K | 501 | 157 | 216 |
| Li | 18 | 7 | 11 |
| Mg | 67 | 241 | 58 |
| Na | 4,576 | 13,791 | 4,128 |
| Si | 208 | 290 | - |
| Zn | 99 | 18 | 36 |

unit: µg/g

2.2.2 염산을 이용한 보론 제거

염산과 보론이 혼합되어 있는 용액을 100 °C

이상으로 가열하면 붕소는 BCl_3 형태로 휘발하게 된다. 이와 같은 특성을 이용하여 보론의 휘발정도를 측정하였다.

붕산 1 g 당 (붕산 중 보론 함량: 18 %) 필요한 염산의 양은 30 % 염산으로 34 g 정도가 된다. 따라서 본 실험에서는 붕산을 A와 B는 1 g 을, C와 D는 3 g을 각각 취하여 100 mL 유리 비커에 담고 진한 염산(32 %)을 50 mL 씩 첨가하고 염산이 완전히 휘발될 때까지 가열한 후 묽은 염산을 첨가하여 남은 붕산을 용해한 후 100 mL로 조제하고 ICP-AES로 보론의 양을 측정하였다. 측정결과 남아있는 붕산의 양이 상당히 많음을 알 수 있었다. 또한 이 방법으로 보론을 제거하기에는 실제 농축폐액 분말 시료에는 보론이 많이 함유되어 있고, 염산을 많이 사용하는 경우가 되므로 적용하기에는 적합하지 않았다.

2.2.3 불산을 이용한 보론 제거

플라스틱 비커에 붕산 1 g을 취한 후 1 mL의 회수를 검증용액(Cr, Co, Ni, Fe, Nd, Sr, 각각 10 μ g) 및 10 mL 질산(1+1)을 첨가하고 1 mL HF를 3회 첨가하면서 증발시켜 보론을 휘발시킨 후 질산(1+1) 10 mL로 조제하여 보론과 회수를 검증용 원소들을 각각 ICP-AES로 측정하였다. ICP-AES 측정결과 HF 3 mL를 사용하면 1 g 정도의 붕산은 충분히 제거할 수 있음을 알 수 있었다.

재현성을 확인하기 위하여 1차 실험과 동일하게 3회 수행하였고, 질산(1+1)으로 20 mL로 조제하여 보론과 회수용 검증용 원소들을 ICP-AES로 측정하였다. ICP-AES 측정결과(Table 2 참조), HF 3 mL를 사용하면 1 g 정도의 붕산은 충분히 제거할 수 있음을 알 수 있었다. 계산적으로는 붕산은 HF에 의해 BF_3 로 휘발된다. 이때 붕산 1 g은 0.016 M 이므로 0.048 M의 HF가 필요하다. 따라서 48 % HF인 경우 27.8 M 정도의 용액이므로 1 mL HF는 0.0278 M에 해당되며, 필요한 HF량은 1.73 mL임을 알 수 있었다.

2.3 결과 및 논의

사전 실험을 통하여 얻은 전처리 방법을 실제 원전 발생 시료에 적용하였다. 분말화한 농축폐액

분말 시료 (5~6) g을 취하여 건조한 다음 산 분해하였다. 산 분해 과정은 시료 1 g 정도를 0.001 g 단위까지 정확하게 취한 후 100 mL 마이크로 웨이브 산처리용 Teflon 산분해 용기에 넣고 염산 3 mL와 불산 3 mL를 가하였다.

Table 2. Results of recovery test.

| 원소 | A | B | C |
|----|------|------|------|
| B | 0.0 | 0.0 | 0.0 |
| Cr | 0.45 | 0.45 | 0.48 |
| Co | 0.50 | 0.52 | 0.54 |
| Ni | 0.50 | 0.52 | 0.53 |
| Fe | 0.44 | 0.41 | 0.46 |
| Sr | 0.41 | 0.38 | 0.42 |

unit: μ g/g

가열판 위에서 가열하여 증발 건조시켜 과량의 보론을 증발시킨 후 6 mL 진한 질산, 3 mL 진한 염산, 1 mL 진한 불산을 각각 첨가하고 마이크로 웨이브 장치를 작동시켜 산 분해한 후 20 mL로 조제한 후 베타선 방출 핵종을 분리하는데 사용하였다.

3. 결론

상기 개발된 전처리 방법을 고리, 영광 및 울진 원전 발생 농축폐액 분말 시료에 적용하였다. 전처리 방법을 적용한 결과, 베타선 방출 핵종을 분리하는데 적용성이 매우 좋은 것을 알 수 있었다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 출연금 주요사업의 일환으로 수행하였습니다.

5. 참고문헌

[1] P. N. Palei, "Analytical Chemistry of Boron", Academy of Sciences of the USSR.