

# 금속시료 중 베타선 방출핵종 분리를 위한 예비실험

최광순\*, 서경원, 권혜정, 이신경, 안홍주

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

\*nkschoi@kaeri.re.kr

## 1. 서론

경주에 방사성폐기물 처분장을 건설하기 위하여 2008년 7월 착공하여 2015년 8월말 준공하였다. 방사성폐기물 처분장이 완공되었으므로 우리연구원에서 임시로 보관하고 있는 중·저준위 방사성폐기물은 처분장으로 운반하여 영구 처분하게 된다. 원자력안전위원회는 고시 2012-53에서 중·저준위 방사성폐기물을 이동할 때 10개 핵종( $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  및  $^{99}\text{Tc}$ ) 및 전알파 핵종의 방사능 농도를 규명하도록 요구하고 있다. 이들 10개 핵종 중에서 베타선 방출핵종( $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{59,63}\text{Ni}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  및  $^{99}\text{Tc}$ )은 X선 분광기, LSC 및 GPC와 같은 방사능계측기로 측정하기 전에 먼저 화학적 방법으로 순수하게 개별 핵종을 분리한 다음 측정하여야 한다. 중·저준위 방사성폐기물 시료 중에서 현재까지 개별핵종 분리 방법을 확립한 시료는 잡고체, 슬러지, 폐수지, 농축분말, 보온재 및 폐필터이다.

앞의 5개 핵종을 순차적으로 순수하게 분리하기 위하여 침전법과 이온 교환 및 추출 크로마토그래피를 이용한다. 개별핵종 분리를 위하여 확립한 방법은 철과 니켈의 함량이 각각 20 mg과 2 mg에 적용이 가능하다. 그러나 탄소강이나 스테인리스강은 시료를 녹일 때 희석배수에 따라 다르나 철과 니켈은 최대로 각각 1400 mg과 120 mg으로 약 65배 많이 있으므로 이미 확립한 분리방법을 적용할 수 없었다. 그 이유는 5개 핵종을 개별 분리할 때 사용하는 이온 교환 수지의 용량에 제한이 있기 때문이다.

따라서 탄소강이나 스테인리스강과 같이 철이나 니켈 함량이 많은 금속시료에서 앞의 베타방출핵종을 순수하게 분리하기 위한 방법을 검토하였다. 문헌조사 결과 금속을 용해한 용액에 암모니아 용액을 가하여 철을  $\text{Fe}(\text{OH})_3$  침전으로 제거하는 방법이 가장 효과적인 것으로 판단되었다. 그러나 철이 침전될 때 함께 있는  $^{4}\text{Nb}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  및  $^{99}\text{Tc}$  핵종이 철과 함께 공침하지 않아야 한다. 그러므로 철을 수산화물 침전으로 제거할 때 다른 핵종은 가능

한 공침이 적게 일어나는 최적의 pH를 찾은 다음, 그 pH에서 5 개 원소의 회수율을 ICP-AES로 측정하여 금속시료에 적용이 가능한지 확인하고자 하였다.

## 2. 본론

### 2.1 실험

탄소강이나 스테인리스강 약 3 그램을 PFA 재질의 비커에 넣고 질산과 염산 각각 15 mL를 3 mL씩 5회로 나누어서 비커에 가하였다. Nb를 녹이기 위하여 추가로 불산 0.1 mL 가하고 가열하였다. 완전히 녹으면 가열판에서 가열하여 부피를 줄이고 20 mL 이하가 되면 가열을 멈추고 식은 다음 묽은 질산으로 20 mL로 맞추었다. 이 용액 8 mL를 취하여 PVC 재질의 비커에 넣고 탄소강인 경우 용액에 Nb, Ni, Sr 및 Re을, 그리고 스테인리스강인 경우 Nb, Sr 및 Re을 일정 양 가하고 잘 섞이도록 자석 젓개로 섞어 주었다. 증류수를 100 mL 가한 다음 섞어 주고 진한 암모니아를 가하여 pH 변화에 따라 철 침전물을 얻었다(Fig. 1). 침전물과 용액을 진공여과 또는 원심분리기를 이용하여 분리하였다. 침전물과 용액을 분리한 다음 용액에 남은 Co, Cr, Fe, Nb, Ni, Sr 및 Re을 ICP-AES로 측정하여 회수율을 구하였다.

### 2.2 결과 및 논의

철 침전물을 용액과 분리할 때 진공여과와 원심 분리 방법을 검토하였다. 진공여과 방법은 시간이 많이 걸릴 뿐만 아니라 가끔 침전물이 여과지를 통과하므로 재현성 있는 결과를 얻기 어려웠다. 반면에 원심분리 방법은 용액과 침전물을 분리할 때 시간이 짧게 걸렸으며, 원심분리용 튜브에 있는 침전으로부터 용액을 부을 때 철 침전물에 거의 따라 들어가지 않았으므로 더 좋은 방법이었다.

탄소강이나 스테인리스강을 염산, 질산, 불산으로 녹인 다음 과량의 철을 선택적으로 제거하기 위하여 pH 변화에 따라 Co, Fe, Nb, Ni, Re, Sr의 회수율을 ICP-AES 표준용액으로 실험하였다. 용액의 pH가 5와 14 이상일 때 침전 후 용액에 남은 원소

의 회수율을 Table 1에 나타내었다. Table 1에서 알 수 있듯이 pH가 5일 때 Fe과 Nb는 0.5% 이하로 그리고 Ni, Re, Sr는 70% 이상 용액에 남았다. 반면에 pH가 14 이상일 때 Fe과 Nb는 0.1% 이하로, 그리고 Sr는 8.3% Ni과 Re는 각각 38.5%와 96.7%가 용액에 있었다. 즉 pH가 14 이상일 때 철 침전물에 니오븀과 스트론튬이 90% 이상 함께 공침되었으며, 니켈의 회수율도 낮으므로 실험 목적에 맞지 않았다.



Fig. 1. Precipitate of Fe(OH)<sub>3</sub>.

Table 1. Recovery of 6 elements depending on pH

Nuclide	pH=5		pH >14	
	Added (mg)	Recovery (%)	Added (mg)	Recovery (%)
Fe	900	0.25	900	0.04
Co	5.5	68.5	NT	NT
Nb	20	0.26	20	0.07
Ni	2	70.4	2	38.5
Re	3	95.3	3	96.7
Sr	3	93.6	3	8.3

따라서 철을 제거하기 위한 용액의 pH는 14 이상보다 pH 5가 실험목적에 맞았다. 최적의 pH 조건을 찾기 위하여 실험한 결과 pH 4와 5가 실험목적에 잘 맞았다. 각각의 pH에서 철, 니오븀은 용액에서 회수율이 0.1% 이하이었으며 니켈은 60% 이상 그리고 레늄과 스트론튬은 각각 88% 및 82% 이상 용액에서 검출되었다. 스테인리스강 주성분인 크롬은 대부분 철과 함께 공침되었으며, 코발트는 pH가 4와 5일 때 각각 58.0%와 56.4%가 용액에

서 측정되었다. 따라서 철을 철수산화물침전으로 제거하면 탄소강이나 스테인리스강과 같은 금속시료 중의 베타선 방출핵종은 기존의 확립한 방법을 적용하여 분리할 수 있을 것으로 판단한다.

### 3. 결론

탄소강이나 스테인리스강과 같이 철이나 니켈의 함량이 높은 금속시료에서 <sup>94</sup>Nb, <sup>59,63</sup>Ni, <sup>90</sup>Sr 및 <sup>99</sup>Tc와 같은 베타핵종을 순수하게 분리하기 위하여 암모니아 용액을 가하여 철을 Fe(OH)<sub>3</sub>로 침전으로 제거하였다. 최적의 pH는 4와 5이었으며 용액에 남아 있는 <sup>59,63</sup>Ni, <sup>90</sup>Sr 및 <sup>99</sup>Tc은 기존의 분리방법을 적용하면 개별 핵종분리가 가능할 것으로 판단한다. 그러나 <sup>94</sup>Nb는 거의 대부분이 철과 함께 공침되므로 철로부터 다시 분리한 다음 계측하여야 한다.

### 4. 감사의 글

본 연구는 미래부 출연금 주요사업의 일환으로 수행하였습니다.

### 5. 참고문헌

[1] Annual Book of ASTM Standard, ASTM E 352-93, 2006