

# 중저준위 방사성폐기물 내 $^{129}\text{I}$ 정량분석을 위한 화학적 분리방법 최적화

유화성\*, 강병만, 김건호, 이광은, 안홍주

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

\*yumars@kaeri.re.kr

## 1. 서론

전 세계적으로 원전을 비롯한 기타 핵시설로부터 배출되고 있는 방사성폐기물의 처리 처분과 관련하여, 방사성 및 생물학적 독성과 핵종의 반감기, 비파괴 방법으로 측정이 곤란한  $\alpha$ · $\beta$  방출핵종 등 규제핵종 선정기준을 마련하고 이에 대한 규제를 강화하고 있다[1]. 최근 국내에서도 원자력안전위원회 고시 제 2014-53호 “중저준위 방사성폐기물 인도규정”에 따라 방사성폐기물의 이력 및 드럼 내용 방사능량, 핵종 농도를 의무적으로 표시하도록 하였다. 특히,  $^{129}\text{I}$ 에 대해서는 방사성폐기물 저장소의 반입 농도 하한치를 매우 낮게 설정하여 엄격하게 규제하고 있기 때문에 방사성폐기물 처분 안전성 확보를 위해 핵종재고량을 신중하게 설정할 필요가 있다.

환경시료나 중저준위 폐기물에 함유되어있는  $^{129}\text{I}$ 의 양은 극히 미량으로 추정되며, 특히 방사성폐기물의 경우 핵물질이나 기타 여러 가지의 핵분열생성물질들이 함유되어 있다. 이러한 원소들은  $^{129}\text{I}$ 의  $\gamma$  혹은  $\beta$ 선의 방사능 측정에 영향을 줄 수 있기 때문에 요오드를 선택적으로 분리, 회수하는 시료의 전처리 과정이 선행되어야 한다. 또한,  $^{129}\text{I}$ 의 경우 낮은 에너지(0.15 MeV)의  $\beta$  입자 방출 및 비방사능을 갖고 있으며,  $\gamma$ -ray (0.0039 MeV)와 X-ray (0.029 MeV) 또한 매우 낮아 직접 측정이 어렵기 때문에 다양한 방법으로 시료전처리 과정을 거쳐 방해원소로부터  $^{129}\text{I}$ 를 선택적으로 분리해야 측정간계를 낮출 수 있다[2].

본 연구에서는 시료의 전처리 및 분리 과정 중 화학적 회수율에 영향을 줄 수 있는 매질의 음이온 성분에 의한 간섭 및 방해요소를 제거하고자 하였다. 이 결과는 방사성폐기물 시료 내 존재하는  $^{129}\text{I}$ 의 방사능 농도를 정량화하여 방사성폐기물 처분 안전성 확보를 위한 명확한 핵종재고량 평가에 목적을 두고 있다.

## 2. 실험 및 결과

### 2.1 시료의 전처리 및 $^{129}\text{I}$ 의 분리·회수

모의 radwaste 내 요오드 정량을 위하여 Iodine-129 표준용액과 운반체로서 KI 용액을 사

용하였다. Fig. 1의 과정에 따라 실험을 진행하여 AgI 침전물을 저준위  $\gamma$ -분광 분석기로 계측하여 방사능 농도를 결정하였다.

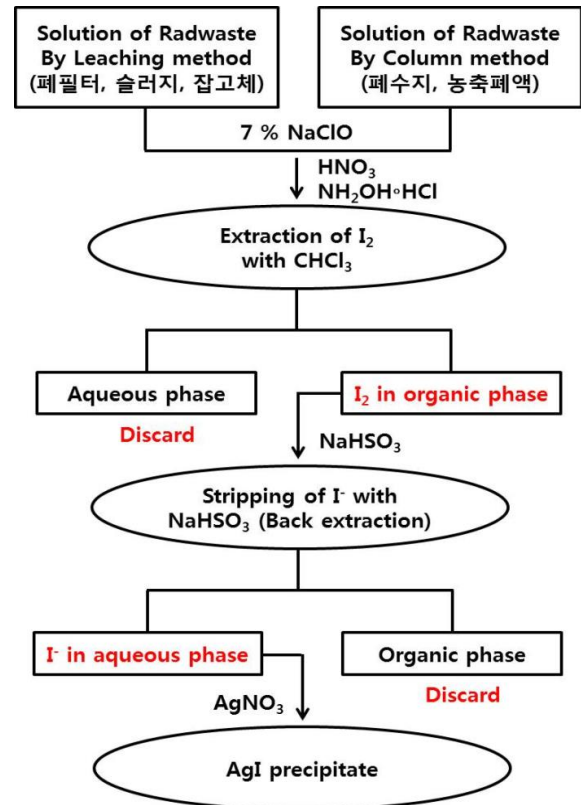


Fig. 1. Analytical processes for the determination of iodine recovery.

### 2.2 매질 내 음이온 성분 분석 및 영향

NaHSO<sub>3</sub>로 역 추출한 용액에 대하여 IC(Ion chromatography) 분석을 진행함으로써, 매질 내 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>와 Cl<sup>-</sup> 음이온이 존재함을 알 수 있었다. 또한, 최종 AgI 침전물에 대한 XRD (X-ray diffraction) 및 EDS (Energy dispersive x-ray spectroscopy) 분석결과  $\gamma$ -AgI와  $\beta$ -AgI가 주침전물로 형성되고, AgCl과 Ag<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> 부침전물이 형성됨을 확인하였다(Table 1 및 Fig. 2). 이러한 결과로써 SO<sub>3</sub><sup>2-</sup> (또는 HSO<sub>3</sub><sup>-</sup>) 음이온이 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 및 Cl<sup>-</sup> 음이온과 매질 내 공존함을 알 수 있다. 이와 같이 AgI 침전 외 부침전물이 동시에 형성됨에 따라 AgI의 화학적 회수율을 증가시키며, 결과적으로 시료 내  $^{129}\text{I}$ 의 방사능 농도가 실제 값에 비하여 낮게 평가된다.

Table 1. EDS analysis results of AgI precipitates for I/Ag ratios between 0.00 and 1.00

El	AN	I/Ag ratio				
		0.00	0.25	0.50	0.75	1.00
Ag	47	33.55	38.54	47.53	42.78	39.93
I	53	-	10.80	33.34	33.32	38.63
Cl	17	4.54	7.36	11.83	6.28	-
S	16	14.96	10.10	-	1.03	1.96
O	8	42.67	26.97	-	7.27	9.43
Na	11	-	-	-	1.92	2.99
C	6	4.30	6.23	7.30	7.40	7.05
Total		100.0	100.0	100.0	100.0	100.0

Atom. C [at. %]

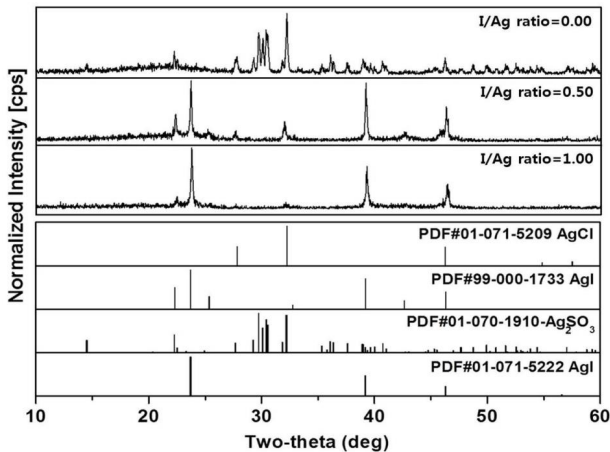
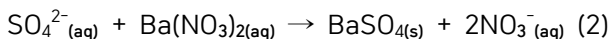
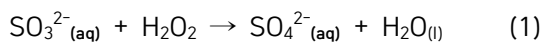


Fig. 2. XRD patterns of AgI precipitates for I/Ag ratios (0.00, 0.50 and 1.00).

### 2.3 음이온에 의한 간섭 및 방해요소 제거

Ag<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> 침전을 생성시키는 SO<sub>3</sub><sup>2-</sup> 음이온을 제거하기 위하여, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>를 이용하여 SO<sub>3</sub><sup>2-</sup>를 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>로 산화시킨 후(Reaction 1), Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 첨가하여 BaSO<sub>4</sub> 형태의 흰색 침전을 형성시킴으로써 매질 내 존재하는 SO<sub>3</sub><sup>2-</sup> 음이온을 선택적으로 제거하였다(Reaction 2).



위 반응 후, 매질의 pH 농도에 따른 실버 할로겐 화물의 특성을 이용하여 AgCl의 생성을 억제하였다. 매질에 NH<sub>4</sub>OH를 첨가하여 pH를 10으로 조절함으로써 Cl<sup>-</sup> 음이온의 간섭 및 방해없이 순수한 AgI 침전물을 얻을 수 있었다(Fig. 3).

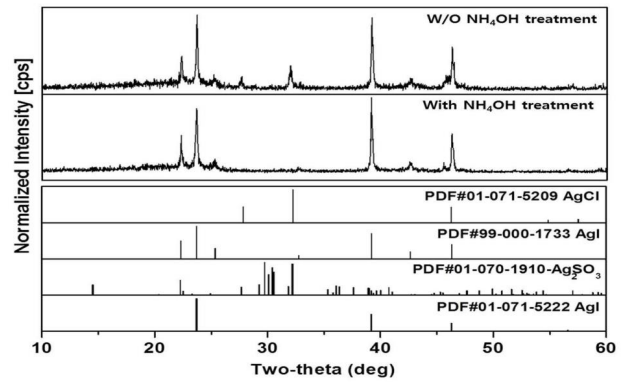


Fig. 3. XRD patterns of AgI precipitates (W/O and W/ NH<sub>4</sub>OH treatment).

### 3. 결론

본 연구에서는 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, SO<sub>3</sub><sup>2-</sup>(HSO<sub>3</sub><sup>-</sup>), Cl<sup>-</sup> 등 간섭 및 방해요소의 제거에 관하여 기술하였다. I/Ag 비율에 따라 생성되는 부침전물의 형태를 분석하여, 침전형성 및 pH 농도를 조절하여 제거하였다. Reaction 1의 과정에서 I<sup>-</sup>가 I<sub>2</sub>로 산화되는 현상이 나타나, 대체 산화제에 대한 연구가 필요하다. 그러나 흥미롭게도, 실제 <sup>129</sup>I 분석과정에서 가능한 I/Ag 비율 0.50 이상에서는 Fig. 3에서 보듯이 NH<sub>4</sub>OH 처리 1단계 과정만으로도 순수한 AgI 침전물을 얻을 수 있다. 이렇듯 본 연구는 방해원소로부터 <sup>129</sup>I를 선택적으로 분리할 수 있는 방법이며, 정확한 화학적 회수율을 구함으로써 <sup>129</sup>I의 방사능 농도를 정량화하여 방사성폐기물 처분 안전성 확보를 위한 명확한 핵종재고량 평가를 가능하게 한다.

### 4. 참고문헌

- [1] K. C. Choi, "Sample pre-treatment for measurement of <sup>129</sup>I in radwastes", J. of the Korean Radioactive Waste Society, 3(1), 49-56 (2005).
- [2] K. C. Choi, "A Study on the Dissolution and Separation for the Quantitative Analysis of Iodine in Spent Nuclear Fuel", ANALYTICAL SCIENCE & TECHNOLOGY, 13, 751-758 (2000).
- [3] F. H. FIRSCHING, "Selective Precipitation of Silver Halides from Homogeneous Solution", ANALYTICAL CHEMISTRY, 32, 1876-1878 (1960).