

# 중·저준위 잡고체 시료 전처리를 위한 회화 및 침출 방법 비교

최광순\*, 황재식, 오심은, 김영복, 안흥주

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

\*nkschoi@kaeri.re.kr

## 1. 서론

중·저준위 방사성폐기물 처분장은 경주시 양북면 봉길리에 2015년에 준공되어 현재 가동 중에 있다. 한국원자력환경공단(KORAD)은 고리, 월성, 울진 및 영광 원자력발전소와 그리고 우리 연구원에서 임시로 보관 중인 방사성폐기물 드럼을 인수받아 보관 및 관리하게 된다. KORAD은 중·저준위 방사성폐기물 드럼을 인수할 때 원안위 고시 제 2015-004호 '중·저준위 방사성폐기물 인도규정'에서 정하는 기준을 기관에 요구한다.

원안위 고시에서 방사능량의 95% 이상을 구성하는 방사성핵종을 규명하도록 요구하고 있다. 또한  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  및 전알파와 같은 14개 핵종의 농도 규명을 요구하고 있다. 따라서 중·저준위 방사성폐기물 드럼 중 잡고체 플라스틱 시료에 존재하는 비휘발성핵종 ( $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  및 전알파 핵종)의 방사능세기를 계측하기 위하여 먼저 용액으로 만들어야 한다.

침출은 고체를 용액에 담가서 우려내는 것이므로 플라스틱 표면에 붙어 있는 방사성핵종을 측정하기 위한 유용한 전처리 방법으로 사료된다. 따라서 플라스틱 시료를 PFA 재질의 비커에 넣고 혼합산(HF-HNO<sub>3</sub>-HCl)을 가하고 가열판에서 가열하여 침출하였다. 또한 회화 방법은 우리부서에서 확립한 전처리 방법으로 잡고체 시료에 적용하여 사용하고 있다. 그러나 이 방법은 고온에서 가열하여 재를 만드는데 시간이 많이 소요된다.

따라서 본 연구는 잡고체 시료 중 플라스틱의 전처리 방법으로 회화 및 침출방법을 적용하여 감마결과를 비교하고자 하였다. 전자는 고온에서 태운 다음 마이크로파 용해장치를 사용하여 생성된 재를 혼합산(염산-질산-불산)으로 용해하였다. 회화 온도는 200-250-300-350-400-450°C로 순차적으로 증가하여 각각의 온도에서 일정시간 동안 유지하였다. 특히 350°C에서 충분히 회화하지 않으면 그 다음 온도에서 회화할 때 화염이 발생하여 온도가

조절되지 않으므로 350°C에서 충분한 시간 동안 회화하여야 한다.

## 2. 본론

### 2.1 실험

플라스틱 시료 약 75 그램을 비커에 넣고 전기로에서 순차적으로 온도를 상승하였다. 온도는 분당 5-10°C로 상승하도록 조절하였으며, 목적 온도에 도달하면 4 시간 동안 회화하였다. 최종적으로 450°C에서 4 시간 회화시킨 다음 실온에서 무게를 측정하여 시료 농축비를 계산하였다. 약 0.6 g의 회분을 PFA (perfluoroalkoxy) 재질의 비커로 옮기고 질산 10 mL, 염산 4 mL, HF 0.25 mL을 가하여 가열판에서 가열하여 용해하였다.

침출방법은 전기로를 사용하여 110°C에서 시료를 건조한 다음, 혼합산 (1 M HNO<sub>3</sub> - 2.5 M HCl - 0.03 M HF) 200 mL을 PFA 재질의 비커에 넣어 플라스틱이 용액에 잠긴 상태로 가열판 위에서 2 시간 가열하여 방사성핵종원소를 침출하였다[1]. 용액의 최종부피는 20 mL로 맞춘 다음 감마분광기로 측정하였다.

### 2.2 결과 및 논의

회화를 위하여 비커에 플라스틱을 넣고 무게를 측정한 결과 74.47 g이었으며, 450°C에서 회화한 다음 측정된 회분의 무게는 0.71 g이었다. 즉 플라스틱을 회화할 경우 시료 농축비는 104.9이었다. 따라서 이 시료의 회분 0.10 g은 플라스틱 10.49 g에 해당되므로 소량의 회분을 취하여 사용하여도 많은 양의 시료를 사용한 것과 같은 농축효과를 얻을 수 있다. 회화한 다음 회분의 무게는 시료마다 다르므로 모든 시료 각각에 대하여 시료 농축비를 계산하여야 한다.

플라스틱 시료를 회화하기 위하여 200°C부터 50°C씩 단계적으로 온도를 상승하여 각각의 온도에서 4 시간씩 회화할 때 그을음이나 화염이 발생하지 않고 회화가 잘되었다. 얻은 회분은 균질하게 되도록 비커에서 유리막대로 분쇄하면서 섞어주었다.

회화가 전처리 과정 중에서 시간이 가장 많이 소요되는 단계이다.

회화한 플라스틱 시료를 마이크로파 용해장치로 용해한 다음 용액에 있는 방사성핵종을 감마분광기로 측정된 결과 Table 1에 나타내었다. 검출된 핵종은  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ 이었다. 회화 후 생성된 재에서 일정 양씩 3개를 취하여 각각 용해하였다. 검출된 핵종을 감마분광기로 측정하였을 때 상대표준편차는 전부 10% 이내로 양호하였다. 그러나  $^{95}\text{Zr}$ 과  $^{241}\text{Am}$ 은 3개 중 2개에서 검출되었으며 다른 핵종은 3개 모두에서 검출되었다.

침출방법으로 전처리한 다음 측정된 결과는 Table 1에서 알 수 있듯이 4개 핵종인  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ 만 검출되었다. 침출방법으로 전처리할 때 사용한 무게는 회화방법보다 약 1/3 작게 사용하였으므로 검출한계가 높아져서  $^{60}\text{Co}$ 와  $^{95}\text{Zr}$ 은 검출되지 않은 것으로 판단된다. 시료당 3개를 침출하였을 때 3개 시료 모두에서 앞의 4개 핵종 모두 검출되었다.  $^{60}\text{Co}$ 의 상대표준편차는 42%로 매우 높았으나 다른 핵종은 10% 이내로 양호하였다.

Table 1. Gamma analytical results in plastic sample after dry ashing and leaching

핵종	Activity (Bq/g)	
	Dry ashing	Leaching
Co-60	5.03±0.30	4.67±2.0
Cs-137	2,140±22	1,870±63
Am-241	182±4	189±3
Eu-154	94.7±1.9	98.4±8.1

회화와 침출방법의 감마 결과 차이는 회화 방법을 기준으로  $^{134}\text{Cs}$ 를 제외하고  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{241}\text{Am}$  및  $^{154}\text{Eu}$ 은 10% 이내로 잘 일치하였다. 반면에  $^{137}\text{Cs}$ 은 12.5%이었다. 플라스틱 시료를 450°C에서 회화방법으로 전처리할 때 450°C에서 4 시간 동안 가열하면 회색의 재를 얻을 수 없으므로 더 오랜 시간 동안 가열하여 시간이 많이 소요되었다. 따라서 전처리시간을 단축하기 위하여 침출방법을 실험한 결과 회화 방법의 결과와 커다란 차이가 없으므로 침출 방법도 가능한 것을 확인하였다.

### 3. 결론

우리 연구원이 임시로 보관하고 있는 중·저준위 방사성폐기물을 경주 처분시설로 이송하기 위하여 잡고체 중 플라스틱 시료에 대한 전처리 방법으로 회화방법과 침출방법이 커다란 차이가 없는 것을 확인하였다. 소요시간을 고려할 때 후자가 더 양호한 방법인 것을 알 수 있었다. 반면에 전처리하기 위한 시료의 양이 작으므로 침출법의 균질도는 회화법에 견주어 좋지 않았다.

### 4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 출연금 주요사업의 일환으로 수행하였음.

### 5. 참고문헌

- [1] Method of Air Sampling and Analysis, James P. Lodge, Jr. Editor.