A study for quantitative analysis of I-129 in radioactive waste using a high-temperature combustion furnace

Chae-Yeon Lee [a,b], Ji-Young Park[a], Hyuncheol Kim[a] , Jong-Myoung Lim[a*]

[a]*Korea Atomic Energy Research Institute*

[b]Chungnam National University

2022.05.19

INTRODUCTION

» ^{129}I in Radioactive waste

- ✓ 자체처분 허용농도 (0.01 Bq/g) 가장 낮음
- ✓ ^{129}I (1.57 x 10^7 y) : 방사성 폐기물 보관 지역 환경 감시를 위한 지표 핵종
  → **장기적인 폐기물 처분 관점 중요**
- ✓ 원자력안전위원회고시 2021-26호, 중·저준위 방사성폐기물 인도규정 제8조(핵종 규명) 14종 중 ^{129}I 포함

방사성 폐기물 → **방사성 특성 평가** → **처분**

토양, 콘크리트, 잡고체

- **방사능 분석법 확립**
  - 신속 분석
  - 분석 공정 폐기물 저감
- 정확한 분석 결과 요구

- 처분 비용
- 자체처분수준 신속 분류

INTRODUCTION

^{129}I Analysis

Seperation & purification

1) Solvent extraction (용매 추출법)

산화수 변화를 위해 많은 시약 사용 → 매질 복잡 → 측정 샘플 정제 필요 → 시간 소요

2) Combustion in pyrolyser (고온 연소법)

고온 연소를 통해 시료 내 유기물 효과적 제거

→ 매질 단순 → 측정 샘플의 별도 **정제과정 없이 바로 측정** 가능 → 신속 분석

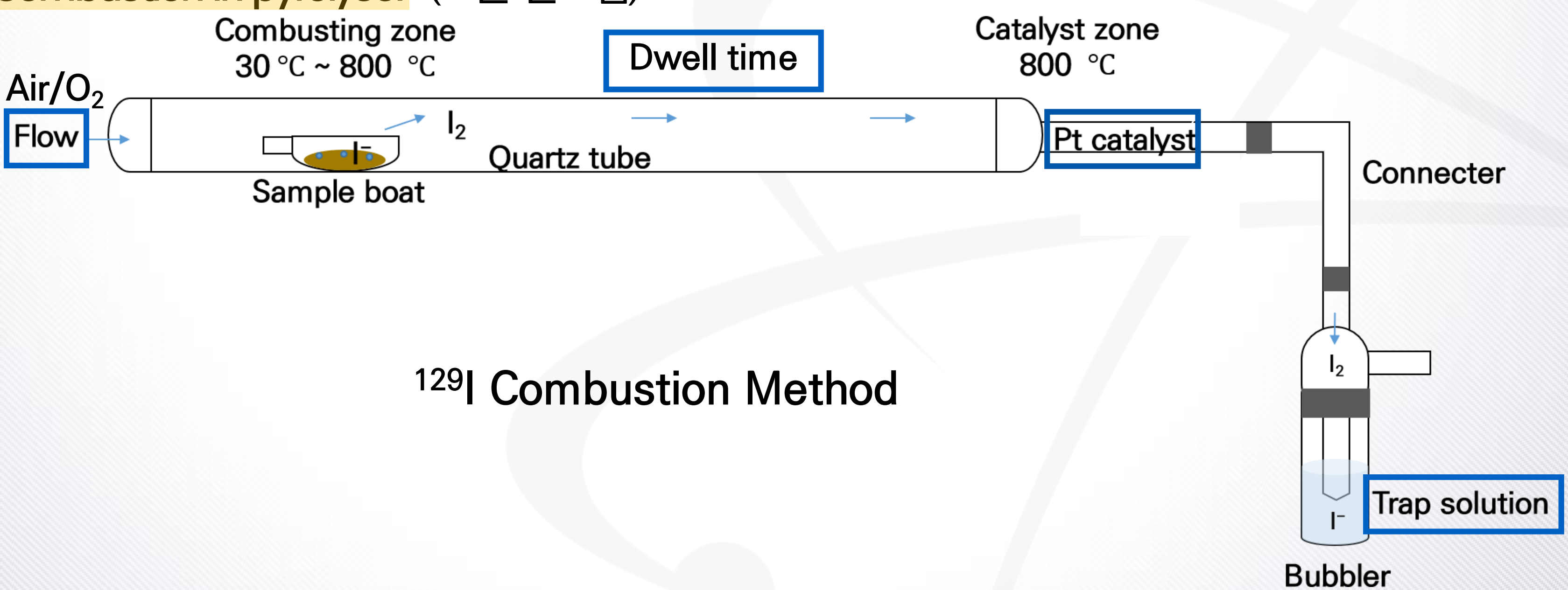
» ^{129}I Analysis

Seperation & purification

1) Solvent extraction (용매 추출법)

산화수 변화를 위해 많은 시약 사용 → 매질 복잡 → 측정 샘플 정제 필요 → 시간 소요

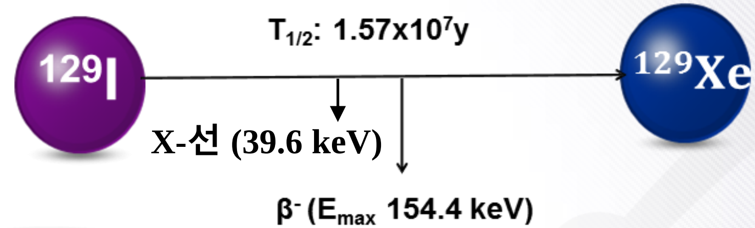
2) Combustion in pyrolyser (고온 연소법)



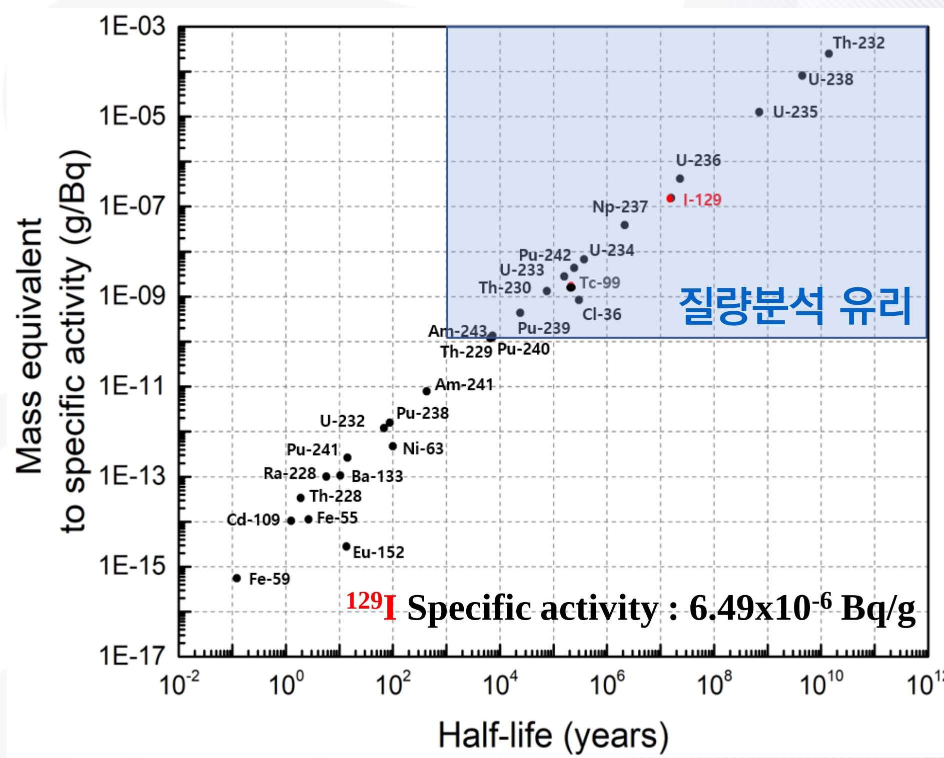
^{129}I Combustion Method

INTRODUCTION

^{129}I Measurement techniques



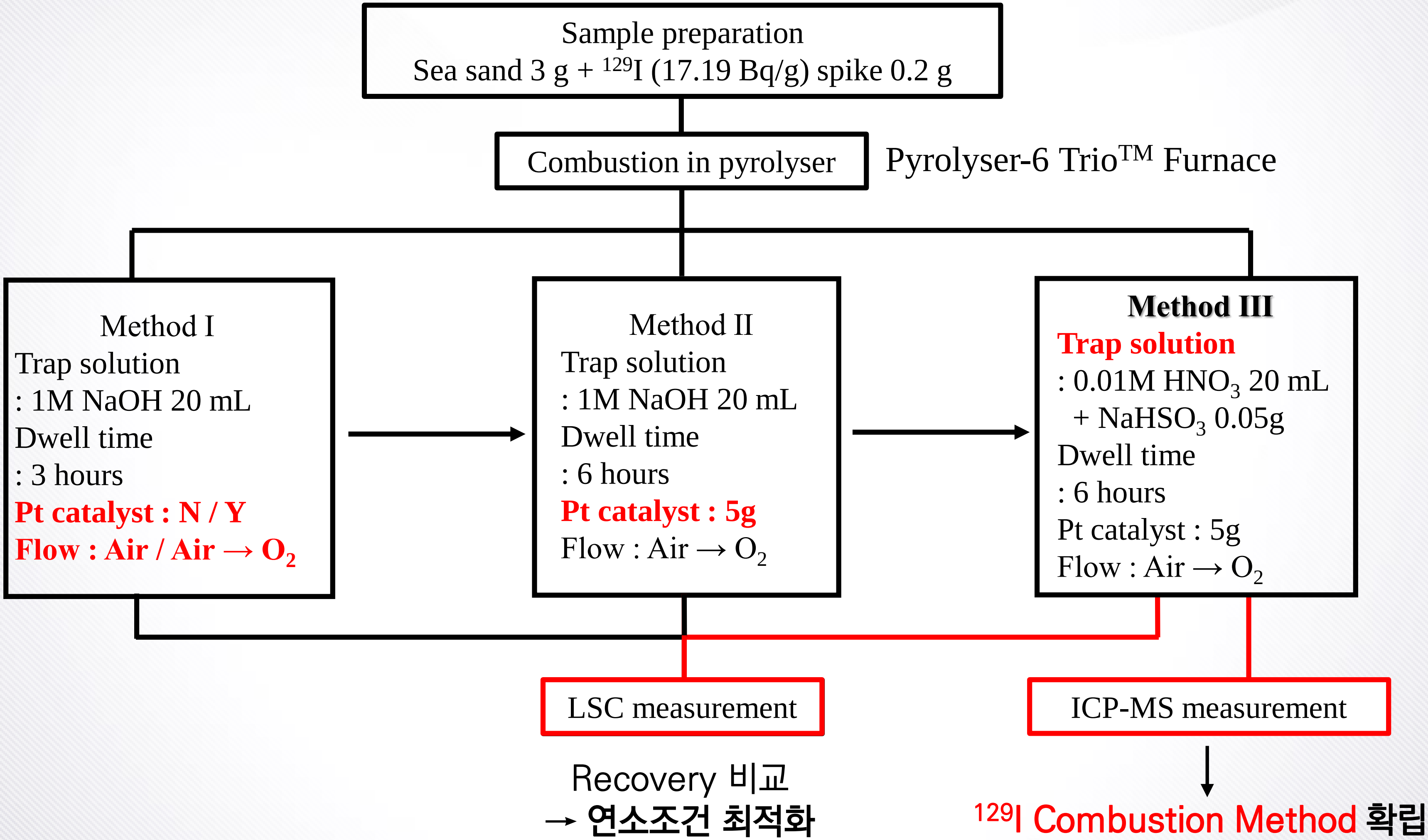
		Detection Limit
RA	LEGe	20mBq
	LSC	10mBq
MS	ICP-MS	0.04 – 0.1 mBq
	NAA	10^{-4} mBq
	AMS	10^{-6} mBq



EXPERIMENT

Combustion in pyrolyser	
Pyrolyser-6 Trio™ Furnace (UK)	Mini-Tube Furnace (KAERI)
	
Sample/Mid/Catalyst zone 800 °C (limit temperature)	Sample/Catalyst zone 900 °C (limit temperature)

EXPERIMENT


Sample preparation
Sea sand 3 g + ^{129}I (17.19 Bq/g) spike 0.2 g
Combustion in pyrolyser
Pyrolyser-6 Trio™ Furnace
Method I
Trap solution
: 1M NaOH 20 mL
Dwell time
: 3 hours
Pt catalyst : N / Y
Flow : Air / Air → O_2
Method II
Trap solution
: 1M NaOH 20 mL
Dwell time
: 6 hours
Pt catalyst : 5g
Flow : Air → O_2
Method III
Trap solution
: 0.01M HNO_3 20 mL
+ $NaHSO_3$ 0.05g
Dwell time
: 6 hours
Pt catalyst : 5g
Flow : Air → O_2
LSC measurement
ICP-MS measurement
Recovery 비교
→ 연소조건 최적화
^{129}I Combustion Method 확립

03 Method I RESULT & DISCUSSION

1) Flow 조건 최적화 실험

Method I
Trap solution
: 1M NaOH 20 mL
Dwell time
: 3 hours
Pt catalyst : N / Y
Flow : Air / Air → O_2

*450℃ 기준으로 전환

Pt catalyst	Flow	Recovery ± SD (%)
N	Only Air	77.4 ± 9.6
	***Air→ O_2**	**99.0 ± 9.5**
Y	Only Air	34.2 ± 12.0
	***Air→ O_2**	23.6 ± 8.8

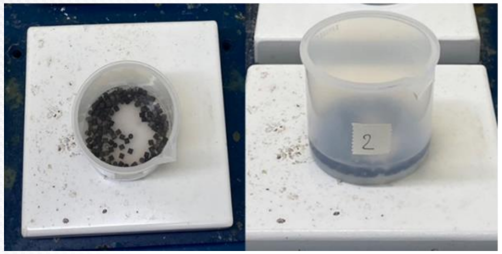
✓ O_2 Flow 추가 → 충분한 산화조건 형성 → ^{129}I**이 더 효과적으로 휘발**되어 포집됨

✓ Pt catalyst 사용 시, ^{129}I 회수율 손실 이유

I_2 → IO_3^- : 촉매에 잔류

03 Method I RESULT & DISCUSSION

✓ Pt catalyst 잔여량 파악



Pt catalyst + 1M NaOH 20mL
hot plate(120℃)

→

원심분리 후 상등액만 취함

→

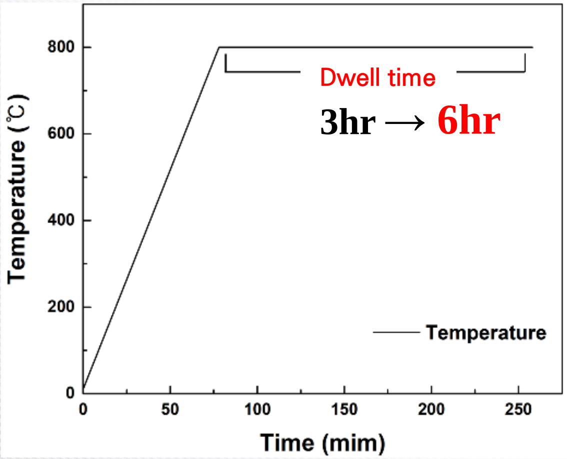
LSC 측정

Sample 8 mL + Gold star 12 mL

↓

44.4 % (30.0 ~ 50.1)

✓ Dwell time 2배 증가



→

회수율 상승 확인

Method II 적용 → Dwell time : 6hr

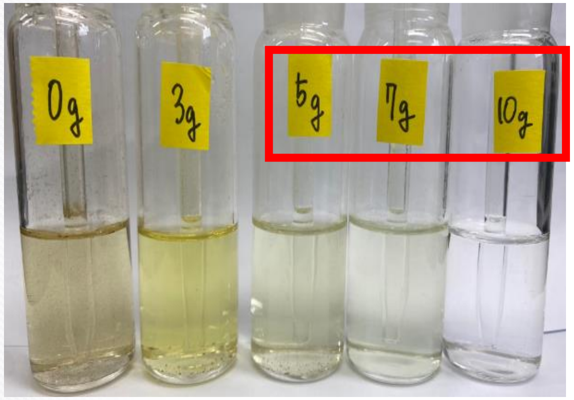
03 Method II RESULT & DISCUSSION

2) Pt catalyst 적정 사용량 결정 실험

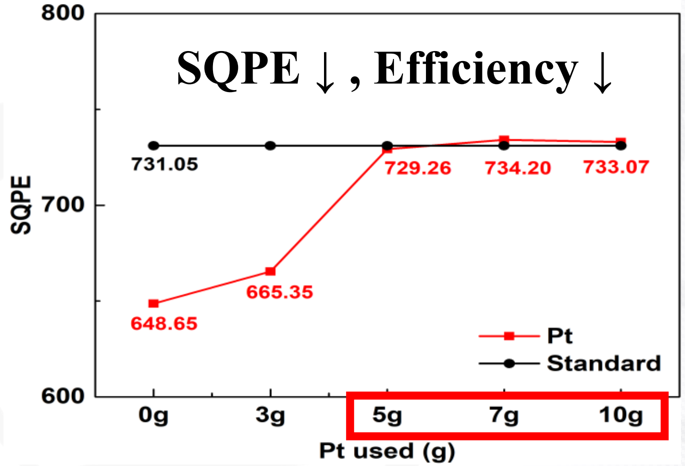
촉매의 필요성

방사성 폐기물 중 유기물 많은 시료 (ex. 가연성 고체 폐기물)

: 연소 시 가스 발생 → 포집용액 오염 (**착색 유발**) → **촉매 필터 역할**



LSC 측정 →



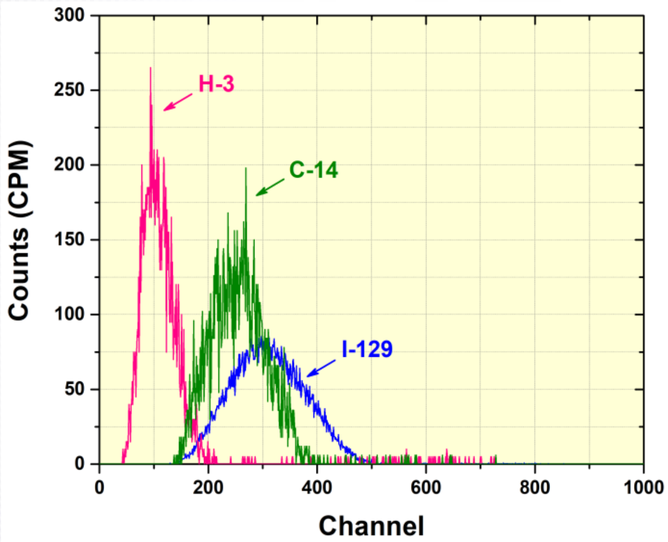
Pt catalyst	Recovery ± SD (%)
0g	99.0 ± 9.5
5g	77.0 ± 9.0
7g	34.2 ± 12.0
10g	49.8 ± 11.1

→

Method II
Trap solution
: 1M NaOH 20 mL
Dwell time
: 6 hours
Pt catalyst : 5g
Flow : Air → O_2

3) 0.01M HNO_3 포집 용액 적용가능성 확인 실험

방사성 폐기물 : ^{129}I 외에도 ^{3}H, ^{14}C와 같은 휘발성 베타 핵종 존재



1M NaOH

^{3}H, ^{14}C, ^{129}I 모두 포집 → peak 겹침

0.01M HNO_3

^{3}H , ^{129}I 동시 포집 → 후단에 ^{14}C 포집

Trap solution	Recovery ± SD (%)
0.01M HNO_3 20mL	3.7 ± 1.4
0.01M HNO_3 20mL + $NaHSO_3$ 0.1g	85.3 ± 13.5
0.01M HNO_3 20mL + $NaHSO_3$ 0.05g	86.8 ± 14.5

Method III

Trap solution

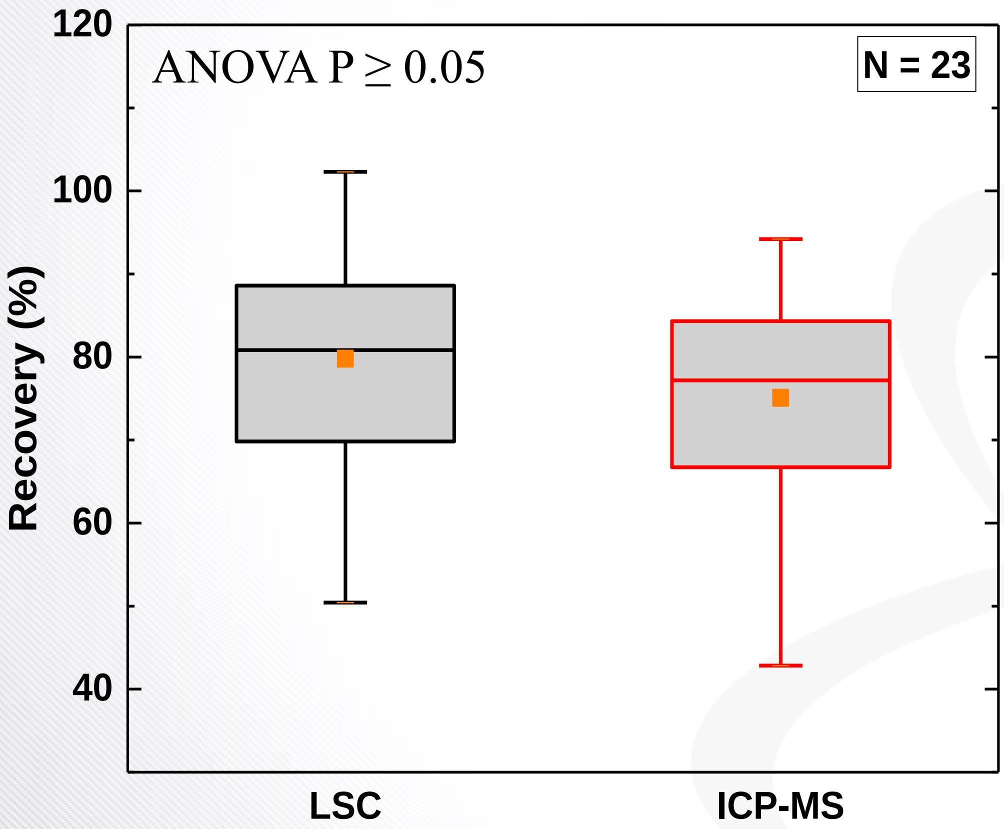
: 0.01M HNO_3 20 mL
+ $NaHSO_3$ 0.05g

Dwell time
: 6 hours

Pt catalyst : 5g

Flow : Air → O_2

✓ LSC 측정 회수율 & ICP-MS 측정 회수율 비교 결과



^{129}I 포집용액

$0.01M\ HNO_3$ 20mL + $NaHSO_3$ 0.05 g

8mL → **LSC 측정**

1mL(DIW 10배 희석) → **ICP-MS 측정**

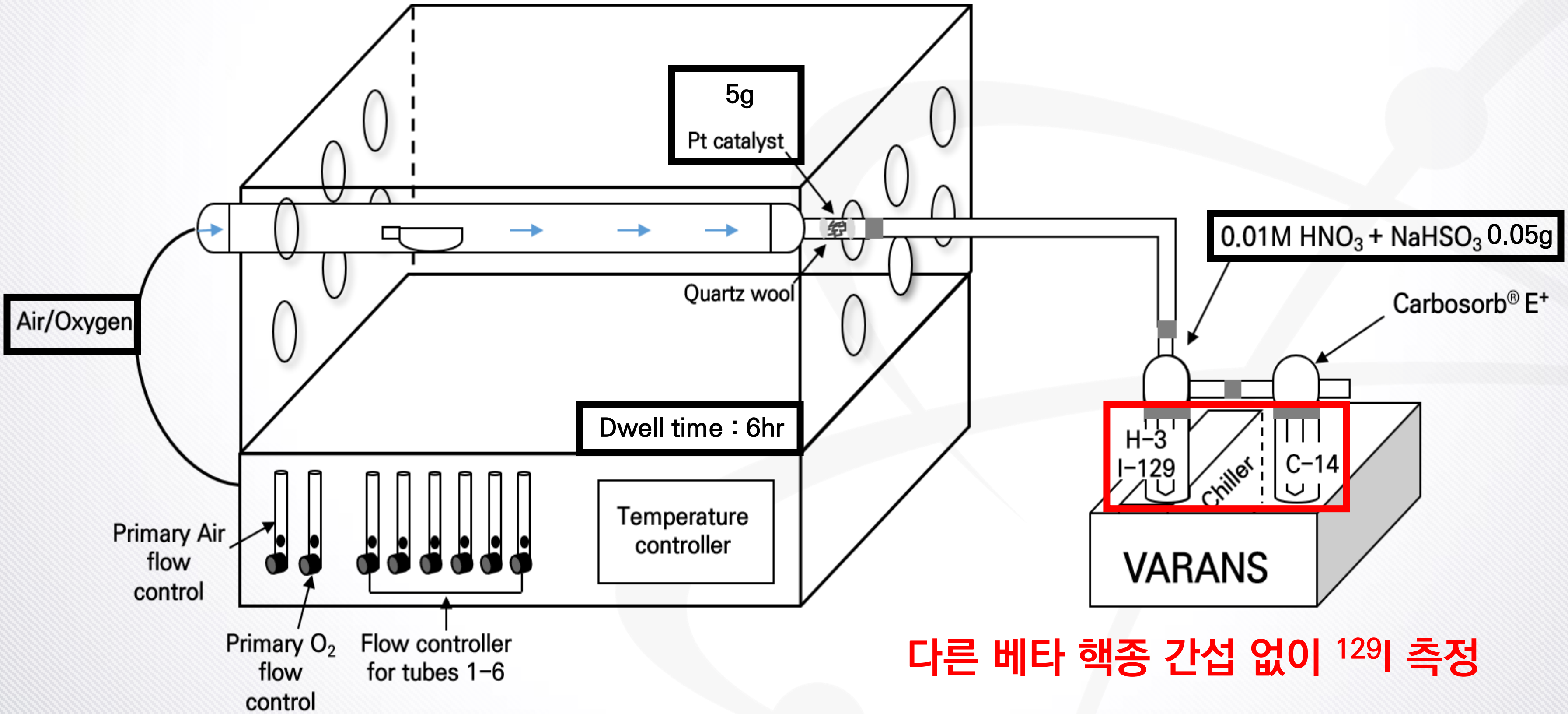
두 방법의 결과 서로 비슷한 수준

⬇

ICP-MS ^{129}I 질량 농도 측정 유효

4) ^{129}I Combustion Method 유효성 확인 실험

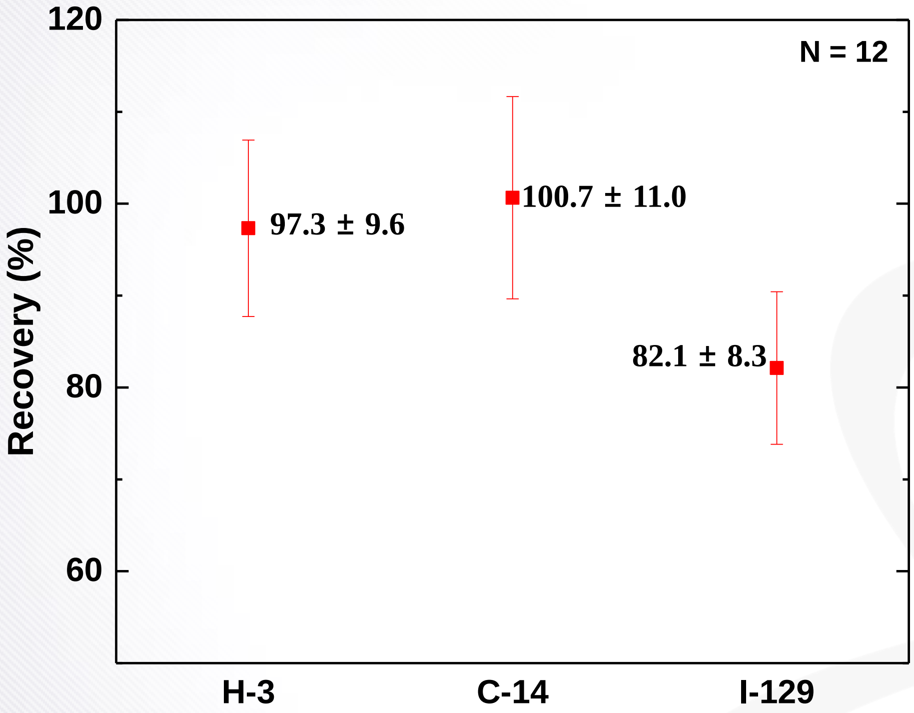
^{129}I Combustion Method 확립 → Mini-Tube Furnace (KAERI) 적용 → 유효성 확인



다른 베타 핵종 간섭 없이 ^{129}I 측정

RESULT & DISCUSSION

✓ 최종 결과



다른 휘발성 베타핵종 영향 없이 ^{129}I 분석 가능

↓

^{129}I Combustion Method 유효성 확인

↓

<u>휘발성 핵종 동시 포집</u> 및 분석 가능

✓ ^{129}I 연소로 분석 후 **배경 값 체크** 필요

여러 차례 Baking test → memory effect 최대한 제거 → 다른 시료를 분석하는 방식

04 CONCLUSION

- ✓ 고온 연소로를 사용한 ^{129}I Combustion Method 확립

Flow	: Air/O_2 (〉450 ℃)
Dwell time	: 6hr
Pt catalyst	: 5g
Trap solution	: 0.01M HNO_3 + $NaHSO_3$ 0.05g
Measurement	: ICP-QMS

- ✓ ICP-MS 를 사용한 ^{129}I의 질량 농도 분석 유효성 확인
- ✓ 방사성 폐기물 내 존재하는 다른 휘발성 베타 핵종(^{3}H , ^{14}C) 간섭 없이 ^{129}I 분리하여 측정 가능
- ✓ Pt catalyst 사용 → ^{129}I 회수율 감소 → Error 요인 작용 → 주기적으로 배경 값 체크
- ✓ 효율적이고 신속한 ^{129}I 분석 공정으로서 적용성이 있으며,

  ICP-MS의 신속한 분석결과를 통해 자체처분 수준 폐기물 신속 분류과정 기대

THANK YOU