

## 입자 크기와 $^{235}\text{U}$ 농축도가 다른 우라늄 함유 실리카입자의 핵분열트랙 특성 연구

### Study in Fission Track Characteristics of the Uranium Containing Silica Particles with Difference Sizes and $^{235}\text{U}$ Contents

표 형열, 이 상경, 손 세철, 박 용준, 지 광용

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요 약

본 연구에서는 우라늄을 함유한 실리카 입자를 제조하고 그들의 핵분열트랙을 측정하여 입자와 그 핵분열트랙간의 상관관계를 알아보았다. 구형의 실리카 입자는 에어러졸 발생장치를 이용하여 제조하였다. 우라늄 함유 실리카 입자는 구형의 실리카 입자를 우라늄 용액에 담아 흡착시키는 방법으로 제조하였다. 우라늄 입자가 열중성자와 반응하여 나오는 다양한 형태의 핵분열트랙들은 Lexan 고체트랙검출기로 검출하였다. 핵분열트랙의 크기와 우라늄 함유 실리카 입자의 지름 및 우라늄의  $^{235}\text{U}$  함량과 고 밀도 핵분열트랙 면적과의 상관관계를 구하였다. 본 연구에서 얻은 상관관계들은 database화하여 swipe 또는 환경 시료 내 미지입자들 중 우라늄 함유 여부, 우라늄 함유입자 크기와 함유 우라늄의  $^{235}\text{U}$  농축도 판별에 적용할 예정이며 또한 본 연구를 통하여 제조한 다양한  $^{235}\text{U}$  농축도의 우라늄함유 입자는 SIMS, TIMS의 표준물질로 사용할 예정이다.

#### Abstract

In this study, we discussed the results of the preparation of uranium containing silica particles and the correlation of particle shape and fission track measured. Spherical silica particles were prepared using an aerosol generator. Uranium containing silica particles were prepared by uranium sorption onto spherical silica particles. Fission tracks for the uranium-absorbed silica particles were detected using a Lexan solid track detector. Correlation of the diameter of U containing particles with the fission track size,  $^{235}\text{U}$  content in each particle and its fission track area were

also discussed in the text. The results of the correlation will be applied to the measurement of uranium in the unknown particles of swipe or environmental samples.

## 1. 서론

분열성 핵물질을 사용하는 시설에서 채취한 입자 시료로부터 개별입자에 대한 화학적 분석 및 동위원소 분석기술은 핵 활동의 유무를 확인하기 위한 하나의 효과적인 분석기술이 될 수 있다.[1-3] 분열성 핵물질(fissile material)의 분석기술로는 중성자 방사화 분석법, 질량분석법, X-선 형광분석법, 핵분열 트랙기입법(fission track registration technique: FTTR), 전위차적정법 등이 있다. 이들 가운데 질량분석법이 가장 정밀한 방법으로 평가되고 있으나, 이 방법은 사전 분리과정이 필요하다.

운모, 유리[4] 및 합성된 고분자 물질 등과 같은 절연성 물질에 대한 핵분열 트랙기입 현상이 발견[5]된 이후, 다양한 종류의 물질들을 고체트랙 검출기로 이용한 핵분열 트랙기입법이 많이 응용되어 왔다. 특히, 입자형태의 시료내 혼적량의 분열성 핵물질을 감지하는 방법으로 핵분열 트랙기입법은 매우 유용한 분석법이다. 이 외에도 핵분열 트랙기입 분석기술은 핵분열 단면적과 중성자속 측정, 광물내 우라늄 함량[6], 우라늄 농축도 측정[7] 및 대기 속 부유입자에 포함된 플루토늄의 분석[8], 연대 측정[9] 등에도 이용되고 있다. 또한, 분석비용, 분석 소요시간, 분석장비의 가격 및 다량, 또는 여러형태의 시료에 대한 상용분석을 고려할 경우에도 핵분열 트랙기입 분석기술은 단순하며 분석비용이 적게 드는 장점이 있어 매우 유리한 방법이다. 핵분열 트랙기입법은 비핵분열성 원소,  $^{237}\text{Np}$  혹은  $^{241}\text{Am}$  같은 높은 방사성 alpha emitter, 또는 낮은 핵분열 단면적을 갖는 동위원소에 의하여 방해받지 않으며,  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ 선과 같은 방사선이나 원소의 원자가 상태변화 역시 핵분열 트랙기입 방법에 영향을 주지 않는다.

한편, 미세 입자를 제조하는 기술에는 여러 가지가 있으나 본 연구에서는 물유리를 원료물질로 aerosol generator를 이용, 구형의 실리카 입자를 제조한 후 침강법을 이용하여 실리카입자의 지름의 크기분포를 작게 하고 pH 4-4.5 사이의 산성에서 실리카 입자에 다양한  $^{235}\text{U}$  농축도의 우라늄(NBS 표준물질)을 흡착시켜 우라늄을 함유한 실리카 입자를 제조하였다. 우라늄을 함유한 실리카 입자는 collodion과 에탄올을 섞은 분산용액에 넣어 입자들을 고르게 분산시킨 후 소량의 분산용액을 취해서 Lexan 판 위에 점적하고 광

학현미경하에서 입자들의 위치를 표시하고 그 위에 고체트랙검출기를 덮고 다시 검출기에도 입자들의 위치를 표시하여 하나로 원자로에서 열중성자 조사한 다음 화학 에칭 하였다. 고체트랙검출기 상에 나타난 핵분열 트랙의 형태는 광학현미경과 digital image analyser system을 이용하여 관찰, 측정하였으며, 입자의 크기와 핵분열트랙 크기, 입자에 함유된  $^{235}\text{U}$  농축도와 핵분열트랙 농집 부분과의 관계들을 구하였다.[10].

## 2. 실험

### 2.1 시약 및 기기

본 연구에서 사용한 구형의 실리카 입자는 vibrating orifice aerosol generator(TSI model 3450)를 이용하여 제조하였다. 실리카 입자는 water glass(SHOWA,  $\text{SiO}_2/\text{Na}_2\text{O}$  mole ratio : 2.17, solid : 55%)를 모체로 사용하여 제조하였다. 핵분열 트랙을 검출하기 위해 사용한 고체트랙검출기는 Lexan plate(bis-phenyl acetone carbonate : GE사의 model 8010 polished film, 두께 : 0.18mm)였으며, 화학 에칭용 시약으로 NaOH(Aldrich, 97%)를 25% 수용액으로 만들어 사용하였다. 제조한 실리카 입자의 형태와 핵분열트랙의 관찰에는 optical microscope(LEICA DMLP, MZ6 with Digital image analysis system)을 이용하였으며, 중성자 조사는 한국원자력연구소의 하나로 연구용 원자로를 이용하였다.

### 2.2 실리카 입자의 제조

Aerosol generator를 이용하여 구형의 다양한 크기의 실리카 입자를 제조하기 위해 물유리와 증류수의 비율을 무게비로 1:20, 1 : 50, 1:100, 1: 200인 저장용액을 만들어 사용하였다. 실리카 입자를 제조하기 위한 실험조건은 지름이 20  $\mu\text{m}$ 인 orifice를 사용하였으며, syringe capacity = 60 mL, syringe run speed =  $4.2 \times 10^{-4}$  cm/s, liquid feed rate = 0.319 mL/min, frequency= 60.0 kHz, dispersion air flow rate = 15 cc/min, dilution air flow rate = 50 L/min, liquid pressure = 10 ~ 20psi 이었다. Aerosol generator에서 발생된 물유리를 함유한 에어로졸은 220 $^{\circ}\text{C}$ 로 가열된 관로를 통과하며 건조된 다음 0.5 M  $\text{H}_2\text{SO}_4$  용액과 접촉하여  $\text{Na}_2\text{O}$  성분이 제거된 구형의 실리카 입자를 얻었다. 실리카 입자는 원심분리, 여과 및 세척과정을 거친 후 회수하고 110  $^{\circ}\text{C}$ 의 oven에서 2시간 동안 건조하였다. 건조한 실리카 입자는 전기로를 이용하여 1  $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 의 조건으로 350  $^{\circ}\text{C}$ 까지 온도를 상승시킨 다음 350  $^{\circ}\text{C}$ 에서 5시간 동안 소결하였다.

제조한 실리카 입자들은 입자크기를 2, 5, 10, 15, 20 $\mu\text{m}$ 로 대별하기 위해 증류수를 분산용액으로 하여 수십 회 중력 침강법을 반복 사용하여 각각의 크기에  $\pm 10\%$  이내의 분산 폭을 갖도록 하여 크기별로 모았다.

### 2.3 실리카 입자에 우라늄 흡착

서로 다른  $^{235}\text{U}$ 의 농축도(0.7, 2, 10, 20, 50%)의 우라늄( $\text{U}_3\text{O}_8$ ) 표준물을 각각 0.07 g 씩 취해 50mL 비커에 넣고 증류수로 적신 후 1mL 진한질산을 첨가하여 녹이고 4방울 정도의 진한염산을 가하고 열판위에서 가열하여 완전히 녹인 다음 증류수로 20 mL로 만들어 우라늄함유 모액으로 사용하였다. 50mg 정도의 구형의 실리카입자를 20mL 바이알에 넣고 우라늄함유모액 3.2mL(10mg U)를 넣고 증류수로 15mL 정도로 희석 하고 0.2 M 암모니아수를 가하여 용액의 pH를 4.2~4.4 사이로 조절한 다음 12시간동안 저어 주면서 방치하였다. 우라늄이 흡착된 실리카 입자는 milliphore(hole size: 0.45 $\mu\text{m}$ ) 여과지로 거르고 증류수로 세척한 다음 110 $^{\circ}\text{C}$ 에서 2시간 건조시켰으며, 흡착된 우라늄의 양은 여과액 내에 남아 있는 우라늄을 ICP-AES로 분석하여 알아보았다.

### 2.4 중성자 조사, 에칭 및 트랙관찰

다양한 농축도의 우라늄을 흡착시킨 실리카 입자들에 대한 핵분열 트랙은 각각의 우라늄 함유 실리카입자들을 극미량 취해 15mL 원심분리관에 넣고 1mL 분산용액을 첨가한 후 touch mixer로 흔들어 잘 분산시킨 후 각각의 분산용액 10  $\mu\text{l}$ 을 미리 눈금을 표시한 Lexan판(7x2cm<sup>2</sup>) 위에 정해진 위치에 점적한 다음 건조시켰다. 그 위에 미리 점적 위치를 표시한 고체트랙검출기 Lexan을 핵분열트랙검출을 위하여 밀착하여 부착한 후 하나로 연구용 원자로를 이용하여 동일한 열중성자 선속( $\sim 1 \times 10^{13}$  n/s $\cdot\text{cm}^2$ )으로 1분간 조사시켰다. 에칭 과정은 중성자를 조사한 Lexan 고체트랙검출기를 증류수로 씻어 표면의 오염물질을 제거한 다음 60  $^{\circ}\text{C}$ 의 6.25M NaOH 용액에서 10분간 저어 주면서 에칭 하였다. 핵분열 트랙은 광학현미경과 digital image analyzer system을 이용하여 관찰하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 실리카 입자에 우라늄 흡착

본 연구에서 제조한 실리카 입자의 형태는 광학현미경을 이용하여 물유리와 증류수의 비율에 따라 입자들 100개 이상을 관찰한 결과 실리카 입자 지름은 물 유리와 증류

수의 비율(1:20, 1 : 50, 1:100, 1: 500)에 따라  $15.8 \pm 2.7$ ,  $11.9 \pm 2.3$ ,  $8.8 \pm 1.9$ ,  $6.3 \pm 1.5/\mu\text{m}$ ..이였다. 실리카 입자의 형태는 대부분 구형이었으나 물유리와 증류수의 비율이 1:20에서 제조한 입자들은 일부 파손되거나 표면이 함몰된 입자들도 관찰되었다. 입자크기는 에어로졸 발생 모 용액의 물유리 함량이 증가할수록 입자의 크기도 커지는 경향을 나타내었다. 우라늄이 흡착된 실리카 입자는 EPMA 분석을 통해 우라늄의 흡착 여부를 확인하였으며, 흡착된 우라늄의 양은 흡착용액을 여과하고 남은 여과액 내에 포함된 우라늄의 양을 ICP-AES로 측정하여 계산하였다. 실리카 입자에 흡착된 우라늄의 양은  $^{235}\text{U}$  농축도와 무관하나 입자크기가 클수록 흡착율은 table 1에 보이는 것과 같이 적어지는 현상을 보였다.

### 3.2 우라늄 함유 입자의 핵분열트랙 관찰

우라늄 함유실리카입자들을 중성자 조사시킨 결과 Fig. 1과 같이 다양한 형태의 핵분열 트랙들을 나타냈다. 핵분열트랙의 크기와 해당입자들의 크기를 측정하여 본 결과 트랙크기는  $^{235}\text{U}$ 농축도와는 관계없이 우라늄함유입자의 크기에 따라 핵분열트랙의 크기도 달라짐을 나타냈다. 입자 지름 1~20  $\mu\text{m}$  사이 우라늄함유실리카 입자들 수백 개를 대상으로 핵분열 트랙크기와 우라늄함유실리카입자크기 관계를 측정한 결과 농축도 별로 약간의 차이는 있으나 우라늄의 농축도와 상관없이 핵분열트랙크기/입자크기 =  $25 \pm 4.7$  이었으며, 우라늄 농축도와 핵분열트랙의 중심부의 고 밀도 트랙면적과의 관계 측정한 결과, 핵분열트랙의 고 밀도 트랙면적은 동일크기의 실리카입자라도  $^{235}\text{U}$  농축도에 따라 증가함을 알 수 있었으며, 농축도와 고 밀도 트랙면적 사이는 고 밀도 트랙면적/입자크기 =  $121 \pm 12 \times ^{235}\text{U}$  농축도+ 1374 ( $r=0.9856$ )의 관계를 나타냈다. 이 외에도 핵분열트랙의 과도한 집중으로 에칭용액의해 심하게 손상된 중심부분의 깊이를 측정하여 그 값과 우라늄함유입자와 관계를 구하면 우라늄함유입자의  $^{235}\text{U}$  농축도를 판단하는데 도움이 될 것으로 판단되었다.

## 4. 결론

본 연구에서는  $^{235}\text{U}$  함량이 서로 다른 우라늄을 함유한 실리카입자(크기 1~20 $\mu\text{m}$ )들의 고체상태 핵분열트랙 검출기 상에 나타난 핵분열 트랙 형태들을 광학현미경을 이용, 관찰하여 입자와 트랙형태간의 상관관계를 알아보았다. 핵분열 트랙의 크기는 우라늄 입자의 크기에 의존하며,  $^{235}\text{U}$  농축도의 증가는 트랙의 고 밀도 트랙면적의 증가와 상관관계가

있음을 나타냈다. 이와 같은 상관관계는 미신고 핵물질 사용시설에서 채취한 swipe 시료 내 미지입자 속의 우라늄 존재여부와 우라늄 존재 시  $^{235}\text{U}$  함량을 예측할 수 있는 바탕이 되어 미신고 핵물질 사용의 증거로 채택할 수 있는 근거를 제공할 수 있으며, 보다 정확한 우라늄의 동위 원소비를 측정하기 위한 TIMS 측정 전 측정입자들을 선정할 수 있는 swipe sample screening 을 할 수 있는 방법으로 이용할 수 있다. 물론 더욱 많은 입자와 핵분열트랙들을 추가 관찰하여 현재에 얻은 상관관계의 신뢰도를 한층 높이도록 하여 향후 실제 현장 swipe 시료 내 미지입자들의 우라늄 존재여부와  $^{235}\text{U}$  농축도를 결정하여 미신고 핵활동을 감지할 수 있는 기술, 흔적량의 분열성 핵물질 입자 분포와 양을 구하여 시설내의 핵물질에 의한 방사능 오염정도를 파악할 수 있는데 적용할 것이며 환경시료 입자중의 우라늄 분석하는 방향으로도 연구를 확장할 예정이다.

## 후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

## 참고문헌

1. D. L. Donohue and Rolf Zeisler, *Anal. Chem.*, Vol. 65, No. 7, 359A (1993).
2. M. Wallenius, P. Peerani, L. Koch, *J. of. radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 246, No. 2 (2000) 317-321.
3. David L. Donohue, *Anal. Chem.*, Jan. 1, 35A (2002).
4. E. C. H. Silk and R. S. Barnes, *Phill. Mag.* **4**, 970 (1959).
5. R. L. Fleischer and P.B.Price, *Science*, **140**, 1221 (1963)pp.
6. D. E. Fisher, *Anal. Chem.*, **42**, 414 (1970).
7. O. Y. Mafra, M. F. Cesat, L. P. Geraldo, E. M. Tanaka and C. Renuer, *Nuclear Instruments and Methods* (1977).
8. B. Center and F. H. Ruddy, *Anal. Chem.*, **48**, 2135 (1976).
9. A. Carter, *Sedimentary Geology*, 124 (1970) 31-45.
10. W. H. Kim et al., KAERI-NEMAC/RR-142/94, (1994).

Table 1. Amounts of adsorbed uranium.

U-235 enrichment(%)	Adsorbed-U/added U (%)				
	2 $\mu$ m	5 $\mu$ m	10 $\mu$ m	15 $\mu$ m	20 $\mu$ m
1	6.8	4.7	4.4	2.8	2.9
5	5.6	4.4	3.5	2.4	2.4
10	6.1	4.6	3.9	3.9	3.5
20	6.2	5.3	4.9	4.3	3.6
50	7.0	6.2	5.7	5.0	4.4

Table 2. Average diameter and depth of individual tracks produced in Lexan detector exposed to  $^{235}\text{U}$  in various concentrations.

U-235 enrichment (%)	Slope		
	Track size/ particle size	Dense area/ particle size	Dense area/ track size
1	18.3	1072	55.9
5	21.7	1830	85.8
10	28.9	3249	121.0
20	28.3	3814	143.6
50	27.9	7292	253.7

- Track radius =  $12.5 \pm 2.5 \times$  particle size  
- Dense area/particle size =  $121 \pm 12 \times$   $^{235}\text{U}$  content(%) + 1374  
- Dense area/track size =  $3.8 \pm 0.3 \times$   $^{235}\text{U}$  content(%) + 67

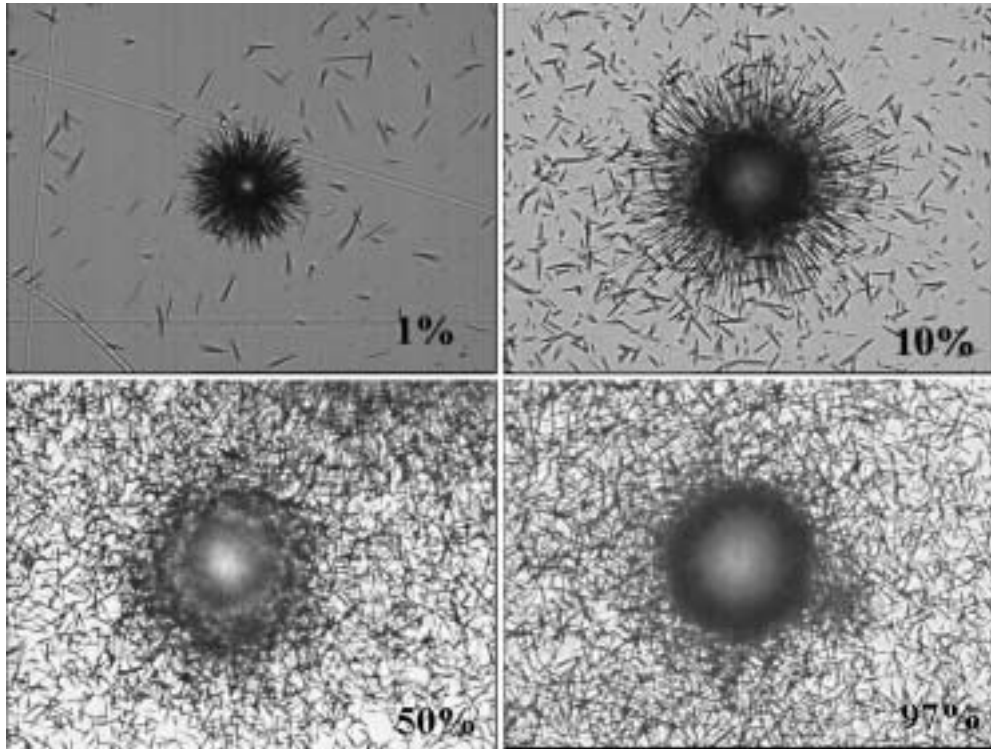


Fig. 1. Fission tracks of uranium containing silica particles