## 2004 춘계학술발표회 논문집 한국원자력학회

# 양이온교환수지 및 알파분광분석법에 의한 방사성폐기물 시료 중 <sup>241</sup>Am 및 <sup>244</sup>Cm 정량

Determination of <sup>241</sup>Am 및 <sup>244</sup>Cm in Radwaste Samples by Cation Exchange Chromatography Followed by Alpha-Spectrometry

> <u>조기수</u>, <sup>\*</sup>김태현, 전영신, 지광용, 김원호 한국원자력연구소 대전광역시 유성구 덕진동 150번지 \*주식회사 액트 대전광역시 대덕구 신일동 1688-5번지

#### 요 약

원전발생 방사성폐기물 시료 중 초우란원소를 정량하기위해 양이온교환수지 및 alphahydroxyisobutyric acid(a-HiBA) 용리액를 사용하여 핵분열생성물질 및 부식생성물 중 <sup>241</sup>Am 및 <sup>244</sup>Cm 의 용리거동을 연구하였다. 0.35M a-HiBA 용리액 조건에서 <sup>241</sup>Am 및 <sup>244</sup>Cm 이 금속불순물로부터 분리되는 조건을 찾았다. <sup>241</sup>Am 및 <sup>244</sup>Cm 이 용리되는 부분 에 불순물로 유입되는 금속원소들에 대한 전착영향을 검토하였다. 방사성폐기물 성분을 포함하는 합성시료에서 U 과 Pu을 음이온교환수지로 제거하고, 다시 양이온교환수지를 사용하여 금속불순물로 부터 <sup>241</sup>Am 및 <sup>244</sup>Cm 을 분리하였다. 분리된 <sup>241</sup>Am 과 <sup>244</sup>Cm 은 알파분광분석법으로 정량하였다.

## Abstract

Elution behavior for Am and Cm was studied by cation exchange chromatography with alpha-hydroxyisobutyric acid( $\mathbf{u}$ -HiBA) as an eluent using synthetic sample solutions containing fission products and corrosion products for the determination of transuranic elements in radwaste samples generated from nuclear power plants. Optimum separation condition of Am and Cm from metal impurities was found to be 0.35M  $\mathbf{u}$ -HiBA eluent. The interference effect on determination of <sup>241</sup>Am and <sup>244</sup>Cm by alpha-spectrometry due to electrodeposition of metal impurities eluted partly together with Am and Cm was checked. <sup>241</sup>Am  $\mathbb{R}^{244}$ Cm were separated from other metal impurities by cation exchange resin and determined by alpha-spectrometry after uranium and plutonium were removed as a first step by anion exchange resin from

the synthetic solution.

# 1. 서론

원전발생 방사성폐기물중 핵분열생성 물질 및 알파선방출핵종의 정량은 방사성폐기물 처 리처분관련 공정관리에 필수적인 정보를 제공하고 있다. 아울러 방사성폐기물의 이력을 정확히 이해할 뿐 만 아니라 핵연료의 연소과정을 추정할 수 있어 이를 통하여 원자로 운영 전반에 중요한 자료를 제공하는데 활용될 수 있다. 이와같이 방사성 폐기물중 성분 원소를 정확하게 분석하기 위해서는 원전발생 폐기물의 종류와 시료유형에 따라 적절한 분석방법을 개발하여야 한다. 그리고 시료유형별로 함유된 방사성 핵종의 농도를 정확하 게 구하므로 핵종간의 상호 연관성을 찾을 수 있으며 이를 토대로 하여, 비파괴적 방법으 로 구해진 핵종의 농도를 이용하여 간접적으로 다른 핵종의 농도를 알 수 있는 각 핵종 별 측도인자(scaling factor)를 구하는 것이 요구되고 있다. 따라서, 본 연구에서는 이들 핵종 중 알파선 방출핵종인 Am, Cm 및 Pu 등의 초우란원소 및 이들 동위원소의 함량을 구하는 화학적 파괴분석법을 확립하고자 한다. 이들 초우란원소 들은 알파방사선을 방출 하므로 취급시 체내흡입이 되지 않도록 유의하여야 하며, 따라서 분석방법이 비방사성시 료에 비하여 매우 제한적이다. 일반적으로 알파방출핵종은 알파에너지의 투과율이 낮기 때문에 개별분리 후 전차과정을 거쳐 진공상태에서 알파에너지를 계측하여 정량한다. 분 리방법은 일반적으로 용매추출이나 이온교환법을 널리 사용하며 분리된 핵종은 질량분석 법(thermoionization mass spectrometry/inductively coupled plasma-mass spectrometry) 으로도 동위원소를 정량하고 있다[1,2]. 방사성폐기물 시료중 Pu, Am 및 Cm 을 음이온 교환수지[3]와 HDEHP 추출크로마토그래피[4]를 차례로 사용하여 분리한 후 질량분석법 으로 Pu 의 동위원소를 측정하고 u-분광분석법으로 <sup>241</sup>Am 및 <sup>244</sup>Cm의 개별 핵종을 정량 하는 연구가 수행되었다. 12M HCl 매질에서 Pu(VI)를 음이온교환수지에 흡착시키고 요 드이온에 의해 Pu는 Pu(III)로 환원하여 용리되고 있으며, 음이온교환 수지에 흡착되지 않고 용출된 Am과 Cm 은 2-(di-ethylhexyl)phosphoric acid (HDEHP) 흡착분리관에 흡 착한 후 Diethylenetriaminepantaacetic acid(DTPA)-lactic acid 용리제로 이를 용리하여 분리한다. 알파분광분석법으로 <sup>241</sup>Am 및 <sup>244</sup>Cm 을 정량할 경우 전기전착을 하여야 한다. 특히 낮은 농도의 핵종을 함유하는 시료일 경우 많은 양의 DTPA-lactic acid 매질을 취 하여야 하며 이 경우 시료전처리 과정에서 많은 양의 유기물(DTPA-lactic acid)을 파괴 하여야 하는 어려움이 있다. 즉, 시료 전처리과정이 너무 복잡하고 많은 시간이 소요된다. 따라서, 본 연구에서는 HDEHP 추출크로마토그래피 대신에 양이온 교환수지를 사용하여 alpha-hydroxyisobutyric acid(a-HiBA) 용리액으로 Am과 Cm을 분리하고자 하였다. 용 리액으로 사용한 a-HiBA 는 낮은 온도에서 쉽게 휘발하여 제거되므로 전착을 위한 시료 전처리과정이 매우 간편하다. -HiBA 용리액의 농도 조건을 변화시키면서 Am과 Cm의 용리거동을 조사하고 아울러 불순물로 작용하는 핵분열생성물 및 부식생성물의 용리거동 을 검토하여 이들 불순물로부터 Am과 Cm을 순수하게 분리할 수 있는 최적조건을 찾고 자 하였다[5,6,7]. 합성용액을 사용하여 음이온교환수지에서 우라늄과 플루토늄을 분리제 거하고 다음으로 양이온교환수지에서 <sup>241</sup>Am 과 <sup>244</sup>Cm을 분리하여 전착한 후 알파분광분

석법으로 이들 핵종의 함량을 구하여 회수율을 측정하였다.

# 2. 실 험

#### 기기 및 시약

그림 1(b)과 같은 양이온교환 분리관(Dowex 50W 100-200 mesh size)을 사용하여 Am과 Cm의 분리거동을 조사하였다. 그리고 우라늄 매질시료로 부터 우라늄 및 플루토늄을 분 리하기 위해 그림 1(a)과 같은 음이온교환 분리관(Dowex AG1x8, 100-200 mesh size) 을 사용하였다. 알파에너지 측정에 사용된 u-Spectrometer는 EG&G/ORTEC 사의 제품 이며 300mm<sup>2</sup> silicon surface barrier detector 가 부착된 Alpha-King module 이었다. 전 착장치는 Polyethylene 전착셀(inner dia 2cm x height 8cm)과 SS 재질의 전착 planchet(dia 1 inch x thickness 0.5m)을 금속재질의 받침대에 부착하여 만들었다[8]. TRU 분리에 용리액으로 사용한 a-hydroxyisobutyric acid(a-HiBA) 는 Aldrich Chemical Co(99%) 제품이었다. 전착용액에 사용된 NaHSO4 는 Junsei Co의 extra pure 급 이었고 Na2SO4는 Merck GR 급 이었다. 전착 종료시 산성매질을 중화하기 위해 전착쎌에 주입 한 NH<sub>3</sub> 는 Merck GR 급 이었다. 그리고 <sup>241</sup>Am 과 <sup>244</sup>Cm의 표준용액은 모두 North America Scientific Inc. 의 제품으로 각각 11.27μci/5.0379 g 과 10 μci/5.0297 g 의 방사 능을 갖는 원용액을 약 20 dps/mL 되도록 희석하여 사용하였다. 전착된 핵종의 알파선 측정에 사용한 표준 알파선원 (Amersham Co, UK)은 <sup>239</sup>Pu, <sup>241</sup>Am 및 <sup>244</sup>Cm 가 거의 같 은 비율로 혼합된 것으로 방사능이 3.28x10<sup>5</sup> dps 였으며 이 표준선원을 사용하여 계측기 의 계측효율을 측정하였다. 이때 <sup>244</sup>Cm 표준용액 및 표준알파선원의 방사능은 <sup>244</sup>Cm 의 반감기(18.1y)을 고려하여 보정한 후 사용하였다. 그리고 <sup>241</sup>Am 과 <sup>244</sup>Cm의 용리거동을 보기 위해 사용한 계측기는 액체섬광계수기(LSC, Canberra Co) 였으며, 그리고 금속불순 물 측정의 경우는 ICP-AES(JY, France)를 사용하였다.

## 양이온교환체에서 TRU 및 금속불순물의 용리거동

그림 1(b)의 분리관을 사용하여 4종의 희토류원소(Dy, Tb, Gd 및 Eu)의 분리거동을 보았 다. 이들 원소를 양이온교환 분리관에 흡착한 후 **n**-HiBA 용리액의 농도를 0.175M에서 0.35M 까지 변화시켰으며, 이때 이들 원소에 대해 용리곡선을 작성하였다. 그리고 35000 MWD/MTU 정도 연소된 핵연료를 대상으로 한 모의시료용액(synthetic solution)을 사용 하여 위와 같은 조건에서 핵분열생물의 용리거동을 조사하였다. 같은 용리액 조건에서 <sup>241</sup>Am과 <sup>244</sup>Cm 의 용리거동을 검토한 후 이들 핵분열생성물로부터 순수하게 분리되는 최 적조건을 찾고자 하였다.



cation exchange column(b) for the separation of Am and Cm

# 3. 결과 및 고찰

#### 희토류원소의 용리거동

양이온교환수지에서 -HiBA 용리액으로 희토류원소의 용리거동을 조사하였다. 일반적으 로 희토류원소의 분리는 유기산을 착화제로 사용하는 것이 효율적인 것으로 알려져 있 으며, 특히 여러종류의 유기산 중에서도 **a**-HiBA 가 가장 좋은 것으로 보고되고 있다 5,6,7,8]. 이것은 희토류원소들은 화학적 성질이 매우 유사하여 개별분리가 쉽지 않지만 🛾 -HiBA의 경우 희토류원소와의 착물의 안정도 상수가 서로 다르기 때문에 개별분리를 할 수 있다[10,11]. 따라서 본 연구에서도 α-HiBA 를 용리제로 선택하여 용리액의 농도 변화에 따라 희토류원소의 용리거동을 검토하였다. 그림 2 에는 0.175M 의 a-HiBA(pH 3.8) 용리액을 사용하였을 때 이들 원소들의 용리곡선을 나타내었다. Ho, Dy, Tb 및 Gd 등의 희토류원소를 선택한 것은 이들 원소의 용리거동이 Am과 Cm 의 용리거동과 유사 하여 서로 비교하기 위해서 이며, 용리액의 pH가 3.8 일때 **u**-HiBA 가 반정도 해리된다. 그림 2에서 보는 바와같이 용리액 약 10 mL 지점부터 Ho, Dy, Tb 및 Gd 순으로 용리 되었으나 상호 개별분리는 되지 않고 있다. 이와같은 용리순서는 무거운 희토류원소 쪽 으로 갈수록 a-HiBA 와 착물을 더 강하게 만들어 지기 때문에 더 빨리 용리된다. 그리 고 용리시간을 단축하기 위하여 a-HiBA 의 농도를 0.2M 까지 높여서 같은 방법으로 이 들 원소의 용리거동을 조사한 결과 그림 3과 같이 나타났으며 무거운 원소일 경우 상호 개별 분리되지 않고 있다. 이때 용리된 희토류원소는 ICP-AES 롤 사용하여 측정한 후 용리곡선을 작성하였다.



Fig 2. Chromatogram of lanthanides on cation exchange column using **u**-hydroxyisobutyric acid as an eluent. Column: Dowex 50Wx8, 100–200 mesh(5.5cm L x 0.4cm Dia), Eluent: 0.175M **u**-HiBA, pH 3.8, Flow rate: gravity flow, Detection: ICP-AES

## TRU(Am/Cm)의 용리거동

회토류원소의 용리조건에서 Am과 Cm의 용리거동을 보기 위해 양이온교환 분리관에 <sup>241</sup>Am 일정량(16.6 Bq)을 흡착한 다음 0.175M 및 0.2M **u**-HiBA 용리액으로 각각 이들 원소를 용리한 결과 용리액 60 mL 까지 용출되지 않았다. 즉, Am과 Cm은 Ho, Dy, Tb 및 Gd 같은 희토류원소 보다는 머무름 시간이 큰 것으로 생각된다. 따라서, 용리액의 농 도를 0.25M 로 높여서 Am을 용리한 결과 표 1에서 보는 바와 같이 약 50 mL에서 부터 조금씩 용리되기 시작하였다. 다시 용리액의 농도를 0.3M 및 0.35M 로 각각 높여서 Am 의 용거 동을 조사한 결과를 표 1 및 그림 4에서 그림 7까지에 나타내었다. 그림 4 에서 보는 바와같이 0.3M **u**-HiBA 용리액에서 약 15 mL에서 부터 용리되기 시작하여 60 mL 까지 계속 증가하였다. 그림 5에서는 0.35M **u**-HiBA 용리액 조건에서 Am의 용리결과를 나타내었는데 5 mL 에서 40 mL 까지 모두 용리되었다. 그리고 같은 0.35M **u**-HiBA 조 건에서 Cm에 대한 용리결과를 그림 6에 나타내었는데 5 mL에서 30 mL 사이에서 모두 용리되었으며, Cm 이 Am 보다 먼저 용리되었다. 그림 7에는 0.35M **u**-HiBA 용리액에 서 Am과 Cm을 각각 흡착한 후 분리거동을 조사한 결과 두 원소 모두 약 40 mL 용리 액으로 분리할 수 있었다. 용리된 알과핵종은 액체섬광계수기(LSC)로 측정하여 용리곡 선을 각각 작성하였다.



Fig 3. Chromatogram of lanthanides on cation exchange column using -HiBA as an eluent. Column: Dowex 50Wx8, 100-200 mesh(5.5cm L x 0.4cm Dia), Eluent: 0.2M -HiBA, pH 3.8, Flow rate: gravity flow, Detection: ICP-AES



Fig 4. Chromatogram of Am on cation exchange column using -HiBA acid as an eluent. Column: Dowex 50Wx8, 100-200 mesh (5.5cm L x 0.4cm Dia), Eluent: 0.30M -HiBA, pH 3.8, Flow rate: gravity flow, Sample: <sup>241</sup>Am 8.3 Bq, Detection: LSC

| using differe | sing different -HiBA concentrations as an eluent (unit : cpm) |               |         |                        |            |
|---------------|---|---------------|---------|------------------------|------------|
| Nuclide       | $^{241}$ Am(8.3)  | /16.6/33.2 Bc | loaded) | <sup>244</sup> Cm(9.51 | Bq loaded) |
| Eluent, mL    | a-HiBA  |               |         | <b>X7 1 T</b>          |            |
|               | 0.25M   | 0.30M         | 0.35M   | volume, mL             | 0.35101    |
| 3             | 10.3  | 8.7           | 7.8     | 5                      | 19.4       |
| 6             | 22.8  | 9.1           | 34.7    | 10                     | 208.2      |
| 9             | 12.1  | 7.7           | 84.2    | 15                     | 206.5      |
| 12            | 8.8   | 9.5           | 91.7    | 20                     | 133.5      |
| 15            | 10.1  | 11.0          | 80.7    | 25                     | 68.7       |
| 18            | 11.7  | 15.6          | 60.5    | 30                     | 31.5       |
| 21            | 8.9   | 22.3          | 35.9    | 35                     | 19.1       |
| 24            | 11.1  | 26.7          | 22.2    | 40                     | 11.0       |
| 27            | 9.9   | 39.5          | 15.5    | 45                     | 10.9       |
| 30            | 10.8  | 47.3          | 12.8    | 50                     | 9.5        |
| 33            | 12.1  | 56.5          | 12.2    | 55                     | 11.5       |
| 36            | 11.8  | 80.3          | 9.8     | 60                     | 10.0       |
| 39            | 10.1  | 89.1          | 8.4     | 65                     | 10.4       |
| 42            | 13.1  | 79.3          | 8.4     |                        |            |
| 45            | 11.4  | 91.8          |         |                        |            |
| 48            | 14.2  | 84.8          |         |                        |            |
| 51            | 13.6  | 97.3          |         |                        |            |
| 54            | 13.9  | 89.2          |         |                        |            |
| 57            | 15.5  | 91.4          |         |                        |            |
| 60            | 16.3  | 115.8         |         |                        |            |

Table 1. Elution profiles of Am and Cm on cation exchange column using different *q*-HiBA concentrations as an eluent (unit : cm



Fig 5. Chromatogram of Am on cation exchange column using **a**-HiBA as an eluent. Column: Dowex 50Wx8, 100-200 mesh (5.5cm L x 0.4cm Dia), Eluent: 0.35M **a**-HiBA, pH 3.8, Flow rate: gravity flow, Sample: <sup>241</sup>Am 8.3 Bq, Detection: LSC



Fig 6. Chromatogram of Cm on cation exchange column using -HiBA as an eluent. Column: Dowex 50Wx8, 100-200 mesh (5.5cm L x 0.4cm Dia), Eluent: 0.35M -HiBA, pH 3.8, Flow rate: gravity flow, Sample: <sup>244</sup>Cm 9.51 Bq, Detection: LSC



Fig 7. Chromatogram of Am and Cm on cation exchange column using **u**-HiBA as an eluent. Column: Dowex 50Wx8, 100-200 mesh(5.5cm L x 0.4cm Dia), Eluent: 0.35M **u**-HiBA, pH 3.8, Flow rate: gravity flow, Sample: <sup>241</sup>Am 8.3 Bq and <sup>244</sup>Cm 9.51 Bq individually eluted, Detection: LSC

#### 핵분열생성물의 용리거동

방사성폐기물 중 핵분열생성물의 용리거동을 보기 위해서 35000 MWD/MTU 정도의 연 소도에서 생성된 핵분열생성물을 대상으로 하여 -HiBA 용리액의 농도변화에 따른 머 무름 현상을 검토하였다. 용리액의 농도를 0.35M 까지 높여서 분리한 결과 그림 8과 같 이 나타났다. 그림 8에서 보는 바와같이 용리액 5mL 이내에 대부분의 원소들이 용리되 었으며, 그 이후에는 가벼운 희토류원인 Nd, Ce 및 La 만이 소량 용출되었다. 같은 용리 조건에서 Cm 및 Am 은 그림 7 에서 보는 바와같이 5 mL에서 40 mL 사이에 용리되므 로 이 구간에 미량의 희토류원소가 포함될 수 있다. 그러나 TRU 속에 포함된 미량의 희토류원소는 TRU 전착조건에서 전착되므로 알파분광분석에 간섭영향을 주는 것으로 생각된다. 그림 9에 이들 핵분열생성물 및 TRU의 분리거동을 함께 나타내었다.



Fig 8. Chromatogram of simulated fission products on cation exchange column using **a**-HiBA as an eluent. Column: Dowex 50Wx8, 100-200 mesh(5.5cm L x 0.4cm Dia), Eluent: 0.35M **a**-HiBA, pH 3.8, Flow rate: gravity flow, Sample: mixture of simulated fission products containing 2.5 ~ 70 µg each as shown in Table 5, Detection: ICP-AES



Fig 9. Chromatogram of TRU and simulated fission products on cation exchange column. Column: Dowex 50Wx8, 100–200 mesh(5.5cm Lx0.4cm Dia), Eluent: 0.35M a-HiBA, pH 3.8, Flow rate: gravity flow, Sample: <sup>241</sup>Cm, 9.5 Bq, <sup>241</sup>Am 8.3 Bq and simulated fission products same as in Fig 7, Unit of TRU reduced down to 50 times, Detection: LSC/ICP-AES

## 금속불순물의 전착영향

그림 9에서 보는 바와같이 0.35M u-HiBA 용리액에서 Am과 Cm이 용리되는 부분에 소 량의 희토류원소 및 전이금속이 용출되었다. 이들 금속원소들이 Am과 Cm이 전착될 때 함께 전착이 될 경우 알파분광분석에 간섭영향을 주므로 이들 원소에 대한 전착영향을 검토할 필요가 있다. 따라서 이들 간섭원소들의 일정량을 전착용액에 투입하여 전착한 planchet과 전착하지 않은 planchet 그 자체를 각각 XRF로 각 성분원소를 측정하여 비교 한 결과 표 2와 같이 나타났다. 이때 투입한 각 성분원소의 양은 Am과 Cm이 용리되는 용리액(a-HiBA 40 mL)중에 포함될 수 있는 최대 불순물의 양을 표시한 것이며, 이때 사 용한 전착조건은 이미 보고된 황산염 전해질(0.1M NaHSO4-0.53M Na2SO4) 용액을 사용 한 것이다[9,12]. 표 2에서 보는 바와같이 불순물을 첨가한 경우 Fe, Ni, Cu 의 양이 base metal에 비해 약간 높은 농도를 나타내었으나, 그 외 Cr, Mn, Co, Mo, Pb, Zn 등의 원소 들은 거의 농도 차이가 없었다. 다음으로 금속불순물과 <sup>241</sup>Am 및 <sup>244</sup>Cm 을 동시에 전착 하여 알파 방사능을 측정하므로 금속불순물에 의한 간섭영향을 보고자 하였다. 즉, 표 2 의 금속불순물(178.4 µg)을 첨가하여 전착한 후 <sup>241</sup>Am 의 알파방사능을 측정한 결과 알 파에너지 측정에 간섭영향이 크게 나타났다. 그러나 그림 9에서 보는 바와같이 초기 약 5 mL를 제외하고 Am과 Cm이 용리되는 부분만(5 mL ~ 40 mL) 분취할 경우 불순물의 양 은 매우 낮을 것으로 생각되며, 이 경우 전착에 의한 간섭영향도 매우 낮을 것으로 생각 된다. 따라서, 향후 미량의 불순물 일지라도 완전히 제거하기 위해 용리액의 농도를 변화

시키거나, 또는 사전에 별도의 용리액을 사용하여 순수하게 Am과 Cm을 분리하고자 한다.

| 전착조건<br>원소 | Base metal/<br>Planchet(%) | Separated on cation<br>exchange(%) | Added<br>(µg) |
|------------|----------------------------|------------------------------------|---------------|
| Fe         | 68.8                       | 70                                 | 47.5          |
| Cr         | 17.8                       | 17.8                               | 3.5           |
| Ni         | 8.62                       | 9.13                               | 98            |
| Mn         | 0.82                       | 0.84                               | 5.2           |
| Со         | 0.42                       | 0.42                               | 0.1           |
| Cu         | 0.28                       | 0.37                               | 8             |
| Р          | 0.16                       | 0.22                               | _             |
| V          | 0.14                       | 0.13                               | -             |
| Мо         | 0.13                       | 0.13                               | 1.5           |
| Si         | 0.11                       | 0.12                               | -             |
| Pb         | -                          | 0.07                               | 5.6           |
| Zn         | -                          | 0.06                               | 9             |
| Total%     | 97.3%                      | 99.6%                              | 178.4µg       |

Table 2. Effect of electrodeposition on the elements eluted at the position of Am and Cm on cation exchange column

# 방사성폐기물 합성용액으로부터 TRU 정량

핵분열생성물이 포함된 합성용액 일정량을 취하고 그림 1(a)의 음이온교환 및 그림 1(b) 의 양이온교환 분리관을 각각 사용하여 Am과 Cm을 분리하였다. 시료용액에 1M HF 2 방울과 1M HClO<sub>4</sub> 10 방울을 넣고 잘 섞어 증발건조 시킨 다음 12M HCl 1 mL 로 녹인 다. 이용액을 미리 준비된 음이온교환수지관(그림 1a) 통과시켜 우라늄과 플루토늄을 제 거한 후 Am과 Cm을 포함하는 용출액을 분취하였다. 분취된 용출액을 hot plate 위에서 증발시키고 여기에 진한 질산용액을 가하여 질산염으로 전환시킨 다시 묽은 질산용액으 로 녹여 양이온교환 분리관(그림 1b)에 흡착하였다. 최종적으로 0.35M a-HiBA용리액으 로 Am과 Cm을 동시에 분리하여 전착한 후 알파분광분석법으로 <sup>241</sup>Am(5.48Mev)과 <sup>244</sup>Cm (5.81Mev) 의 방사능을 측정한 다음 각 핵종의 함량을 구하였으나[13] 불순물에 의한 간섭영향으로 회수율이 낮았다. 그림 10에 전체 분리과정을, 그리고 그림 11에 <sup>241</sup>Am 및 <sup>244</sup>Cm의 알파 스펙트럼을 각각 나타내었으며 이때 피크의 분해능(FWHM)은 약 20 kev 정도였다.

# 4. 결론

방사성폐기물 시료중 <sup>241</sup>Am과 <sup>244</sup>Cm을 분리하기 위해 기존의 HDEHP 추출크로마토그래 피 대신에 시료전처리 과정이 매우 간편한 --HiBA 용리액을 사용하는 양이온교환 수지 법을 적용하였다. 방사성폐기물 합성용액 중 우라늄과 플루토늄을 음이온교환수지로 일차 제거한 후 양이온교환수지와 0.35M --HiBA 용리액을 사용하여 <sup>241</sup>Am과 <sup>244</sup>Cm을 핵분열 생성물로 부터 분리할 수 있었다. 분리된 알파핵종은 전착과정을 거친 후 알파분광분석법



Fig 10. Separation scheme of Pu, Am and Cm by anion exchange and cation exchange chromatography



Fig 11. Alpha spectrum of  $^{\rm 241}{\rm Am}$  and  $^{\rm 244}{\rm Cm}$ 

으로 정량한 결과 소량의 금속불순물로 인해 간섭영향을 나타내었다. 따라서, 향후 이들 금속 불순물로부터 TRU를 순수하게 분리하기 위하여 용리액의 조건을 달리하는 용리액 구배법(eluent gradient)을 적용하고자 한다.

#### 참고문헌

1. 이창헌, 서무열, 최계천, 박양순, 지광용, 김원호, J. Analytical Science & Technology, **13**, 474(2000).

2. J. M. Barrero Moreno, M. Betti and J. I. Garcio Alonso, J. Analytical Atomic Spectrometry, **12**, 355–361(1997).

3. ASTM E 321-75, Part 45(1975).

4. Chang Heon Lee, Moo Yul Suh, Kwang Soon Choi, Jung Suk Kim, Byong Chul Song, Kwang Yong Jee, Won Ho Kim, Analytica Chimica Acta, **428**, 133(2001).

5. C. H. Knight, R. M.Cassidy, B. M. Recoskie, L. W. Green, Anal. Chem., **56**(3), 474–478(1984).

6. R. M. Cassidy, S. Elchuk, L.W. Green, C.H. Knight, F. C. Miller and B. M. Recoskie, J. Radioanal. and Nucl. Chem., **139**(1), 55–64(1990).

7. Charles A. Lucy, Lutifye Gureli and Steve Elchuk, Anal. Chem., **65**(22), 3320–3325 (1993).

8. Charles A. Lucy, Lutfiye Gureli and Steve Elchuk, Anal. Chem., **65**(22), 3320–3325 (1993).

9. Kihsoo Joe, Chang-Heon Lee, Byung-Chul Song, Young-Shin Jeon, Won-Ho Kim and Joeng-Kee Suh, Bull. of the Kor. Chem. Soc., **24**(5), 657–660(2003).

10. Arthur E Martell, "Stability Constants of Metal-Ion Complexes", Part II Organic Ligands Including Marcromolecule Ligands, The Chemical Society, Burlington House, London, 1971.

11. D. D. Perrin, "Stability Constants of Metal-Ion Complexes", Part B Organic Ligands, Pergamon Press, 1979.

12. S. Bajo, J. Eikenberg, J. of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, **242**(3), 745–751 (1999).

13. Lawrence Livemore National Laboratory, ESH Manual, Document 20.2, "LLNL Radiological Safetty Program for Radioactive Materials", 1999.