

우라늄 함유 실리카 입자의 핵분열트랙 특성연구

Studies on Fission Track Properties of the Uranium Containing Silica Particles

표형열, 손세철, 지광용, 김원호

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

본 연구에서는 우라늄을 함유한 실리카 입자를 제조하고 그들의 핵분열트랙을 측정하여 입자와 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 핵분열트랙들은 Lexan 고체트랙 검출기로 검출하였다. 핵분열트랙의 형태와 우라늄 함유 실리카 입자의 지름 및 우라늄의 ^{235}U 함량과의 상관관계를 검토하였다. 본 연구에서 얻은 상관관계는 미지 입자내 우라늄 함량 측정에 적용할 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 made using an aerosol generator. Uranium contained 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 and ^{235}U content of particles with fission track shapes were also discussed. The results of the correlation will be applied for the measurement of uranium in unknown particles.

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. 분열성 핵물질(fissile material)의 분석기술로는 중성자 방사화분석법, 질량분석법, X-선 형광 분석법, 핵분열 트랙기입법(fission track registration technique: FTRT), 전위차적정법 등이 있다. 이들 가운데 질량분석법이 가장 정밀한 방법으로 평가되고 있으나, 이 방법은 사전 분리과정이 필요하다.

운모, 유리[1] 및 합성된 고분자 물질 등과 같은 절연성 물질에 대한 핵분열 트랙기입 현상이 발견[2]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 여기함수의 측정, 핵분열토막 각 분포 측정, 중성자속 측정, 광물내 우라늄 함량[3], 우라늄 농축도 측정[4] 및 대기 속 부유입자에 포함된 플루토늄의 분석[5] 등에도 이용되고 있다. 또한, 분석비용, 정확도, 분석 소요시간, 분석장비의 가격 및 다량의 시료에 대한 상용분석을 고려할 경우에도 핵분열 트랙기입 분석기술은 정확도가 높고 단순하며 분석비용이 적게 드는 장점이 있어 매우 유리한 방법이다. 핵분열 트랙기입법은 비핵분열성 원소, ^{237}Np 혹은 ^{241}Am 같은 높은 방사성 alpha emitter, 또는 낮은 핵분열 단면적을 갖는 동위원소에 의하여 방해받지 않으며, 원소의 원자가 상태 역시 핵분열 트랙기입 방법에 영향을 주지 않는다.

한편, 미세 입자를 제조하는 기술에는 여러 가지가 있다. 에어로졸 분해 또는 분사 열분해법(spray pyrolysis)은 세라믹 분말 입자를 제조하기 위한 가장 적합한 방법 중에 하나이다. 이외에도 미세 입자를 제조하는 방법으로는 기계적인 방법, 화학적인 방법, 전기 화학적 방법, 화학적 증기전착(chemical vapor deposition, CVD) 방법, laser ablation 방법, sol-gel 방법 등 여러 가지 방법이 있다.

본 연구에서는 이미 보고된 실리카 입자 제조방법을 바탕으로, 우라늄이 포함된 실리카 입자를 제조하고 이들 입자에 의해 생성된 핵분열 트랙의 형태를 관찰하였다. 구형의 실리카 입자는 aerosol generator를 이용하여 제조한 후 산성용액에서 실리카 입자에 우라늄을 흡착시켜 우라늄을 함유한 실리카 입자를 제조하였다. 우라늄을 함유한 실리카 입자는 분산용액에 넣어 입자들을 고르게 분산시킨 후 소량의 분산용액을 취해서 Lexan 판위에 점적하고 그 위에 고체트랙검출기를 덮고 하나로 원자로에서 중성자 조사한 다음 화학 에칭 하였다. 고체트랙검출기 상에 나타난 핵분열 트랙의 형태 및 크기 등은 광학현미경과 digital image analyser system을 이용하여 관찰하였으며, 입자의 크기 및 ^{235}U 농축도와 핵분열트랙 형태와의 관계를 검토하였다[6].

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 : 0.18 and 0.5 mm)였으며, 화학 에칭용 시약으로는 NaOH(Aldrich, 97%) 용액을 사용하였다. 제조한 실리카 입자의 형태와 크기는 Scanning electron microscope(SEM, JEOL JKA 8600)을 이용하여 측정하였다. 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 실리카 입자를 제조하기 위하여 물유리를 일정량 취한 후 증류수로 희석하여 $\text{SiO}_2 : \text{H}_2\text{O}$ mole 비가 1 : 50인 저장용액을 만들었다. 실리카 입자를 제조하기 위한 실험조건은 지름이 20 μm 인 orifice를 사용하였으며, syringe capacity = 60 mL, syringe run speed = 4.2×10^{-4} cm/s, liquid feed rate = 0.319 mL/min, frequency = 60.0 kHz, dispersion air flow rate = 50 L/min, dilution air flow rate = 1 L/min, liquid pressure = 20~24psi 이었다. Aerosol generator에서 발생된 물 유리를 함유한 에어로졸은 0.5 M H_2SO_4 용액에 회수되도록 하여 Na_2O 성분이 제거된 구형의 실리카 입자를 얻었다. 실리카 입자는 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 550 $^\circ\text{C}$ 까지 온도를 상승시킨 다음 550 $^\circ\text{C}$ 에서 5시간 동안 소결하였다.

2.3 실리카 입자에 우라늄 흡착

서로 다른 ^{235}U 의 농축도(1, 5, 10, 20, 50%)의 우라늄이 0.05 g/mL 농도인 용액 0.1 mL를 취해서 증류수 20 mL로 희석하고 0.2 M 암모니아수를 가하여 용액의 pH를 4.2~4.5 사이로 맞추는 다음 제조된 실리카 입자 0.100 g 씩을 각각에 넣고 다시 pH를 4.2~4.5사이로 맞추는 후 12시간동안 저어 주면서 방치하였다. 우라늄이 흡착된 실리카 입자는 0.45 μm cellulose 여과지로 거르고 증류수로 세척한 다음 110 $^\circ\text{C}$ 에서 2시간 건조시켰으며, 흡착된 우라늄의 양은 여과액 내에 남아 있는 우라늄을 ICP-AES로 분석하였다.

2.4 중성자 조사, 에칭 및 트랙관찰

우라늄을 흡착시킨 실리카 입자에 대한 핵분열 트랙은 소량의 우라늄 함유 실리카입 자를 분

산용액에 넣고 ultrasonic cleaner bath에서 흔들어 잘 분산시킨 후 5 μl 의 분산용액을 미리 눈금을 그어놓은 Lexan판 위에 점적한 다음 건조시켰다. 그 위에 고체트랙검출기인 Lexan을 핵분열트랙 검출을 위하여 밀착하여 부착한 후 열중성자 조사는 하나로 연구용 원자로를 이용하여 동일한 중성자 선속($\sim 1 \times 10^{13}$ n/s \cdot cm²)으로 1분간 조사시켰다. 에칭 과정은 중성자를 조사한 Lexan 고체 트랙검출기를 증류수로 씻어 표면의 오염물질을 제거한 다음 60 $^{\circ}\text{C}$ 의 6.25 M 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 SEM과 광학현미경을 이용하여 관찰하였으며, 관찰 결과 실리카 입자는 지름이 약 5~15 μm 인 구형으로 나타났다. 실리카 입자의 형태는 대부분 구형이었으나 일부 파손되거나 표면이 함몰된 입자들도 생성되었으며, 입자크기는 에어로졸 발생 모용액의 SiO₂함량이 증가할수록 입자의 크기도 커지는 경향을 나타내었다. 제조한 실리카 입자는 흡착 방법을 통해 우라늄 함유 실리카 입자를 제조하는데 사용하였다. 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 흡착용액의 pH에 따라 차이가 있었다. 흡착용액의 pH가 4.5인 경우가 pH가 4.2인 경우보다 흡착된 우라늄의 양이 많은 것으로 나타났다.

3.2 우라늄 함유 입자의 핵분열트랙 관찰

²³⁵U의 함량에 따른 핵분열 트랙형태에 대한 예를 Fig. 1에 나타냈다. 핵분열트랙은 입자의 크기에 따라 핵분열트랙의 크기도 달라짐을 나타냈다. 입자의 지름이 2~27 μm 인 우라늄함유 실리카 입자를 대상으로 중성자 조사하고 핵분열 트랙의 반경을 측정한 결과, 트랙의 반경이 110~540 μm 인 것으로 나타났으며, 이 값을 이용하여 우라늄함유 입자 지름과 핵분열 트랙 지름사이의 관계를 도식한 결과는 Fig. 2에 나타냈으며 이들 사이에는 기울기가 15.9 ± 2.7 이었다. 입자의 크기가 동일한 경우에, 우라늄 농축도와 핵분열트랙 형태사이의 상관관계 측정에는 ²³⁵U 농축도와 트랙크기, 농축도와 트랙의 형태, 농축도와 고 밀도 트랙면적, 농축도와 트랙의 단면깊이 등의 관계를 선정하여 측정결과를 상호변수들에 의한 다변적으로 비교해야 할 것으로 판단되었다. 입자들에 의해 생성된 핵분열트랙으로부터 고 밀도 핵분열트랙 면적과 우라늄 농축도사이의 관계를 알아보았다. 동일한 크기의 입자인 경우에, Fig.3에 나타낸 바와 같이 ²³⁵U 농축도가 큰 경우가 고 밀도 핵분열트랙면적도 큰 경향을 나타내었다.

4. 결 론

본 연구에서는 우라늄을 함유한 입자의 핵분열 트랙 형태를 고체상대 핵분열트랙 검출기를 이용하여 측정한 결과에 대해 검토하였다. 우라늄을 함유한 실리카 입자는 aerosol generator를 이용하여 실리카 입자를 제조한 후 그 입자에 우라늄을 흡착시키는 방법으로 제조하였다. 우라늄을 함유한 실리카 입자에 대한 핵분열 트랙은 Lexan 검출기를 이용하여 검출하였다. 핵분열 트랙의 크기는 우라늄 입자의 크기에 의존하며, ^{235}U 농축도는 트랙의 고 밀도 트랙면적과 상관관계가 있음을 나타냈다. 이와 같은 상관관계를 바탕으로 향후 연구에서는 미지입자중의 우라늄 존재 여부와 ^{235}U 농축도를 결정하여 미신고 핵활동을 감지할 수 있는 기술과 혼적량의 분열성 핵물질 입자 분포와 양을 구하여 시설내의 핵물질에 의한 방사능 오염정도를 파악할 수 있는 방법을 확립하는 방향으로 연구를 확장할 예정이다.

후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력연구 개발사업의 일환으로 수행되었음.

참고문헌

1. E. C. H. Silk and R. S. Barnes, *Phill. Mag.* **4**, 970 (1959).
2. R. L. Fleischer and P.B.Price, *Science*, **140**, 1221 (1963)pp.
3. D. E. Fisher, *Anal. Chem.*, **42**, 414 (1970).
4. O. Y. Mafra, M. F. Cesat, L. P. Geraldo, E. M. Tanaka and C. Renuer, *Nuclear Instruments and Methods* (1977)
5. B. Center and F. H. Ruddy, *Anal. Chem.*, **48**, 2135 (1976).
6. W. H. Kim et al., *KAERI-NEMAC/RR-142/94*, (1994).

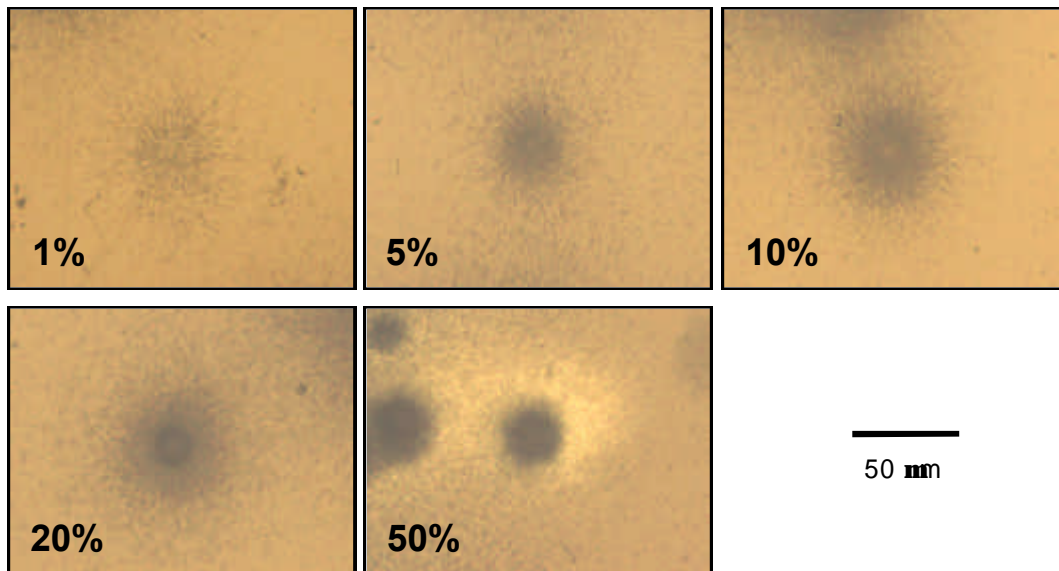


Fig. 1. Fission tracks of uranium-contained silica particles.

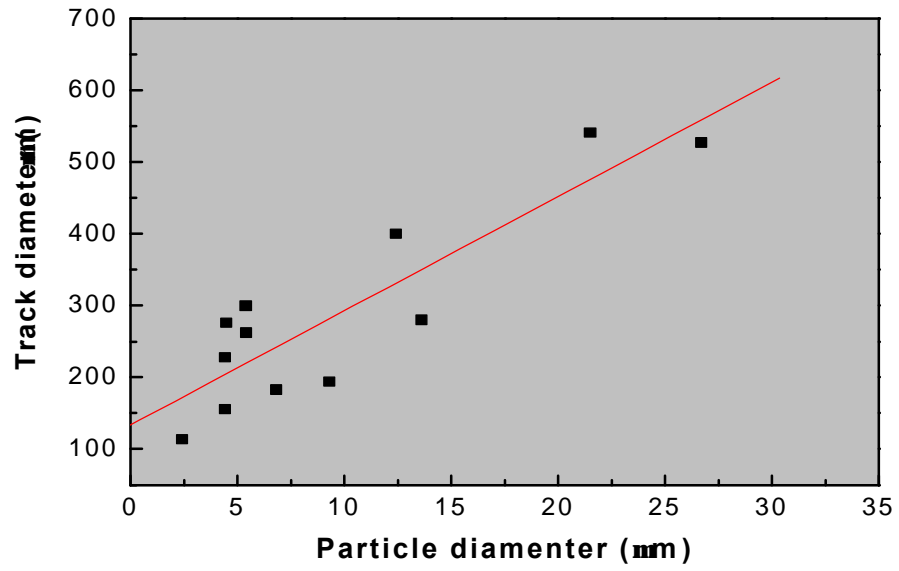


Fig. 2. Correlation of particle diameter and track diameter.

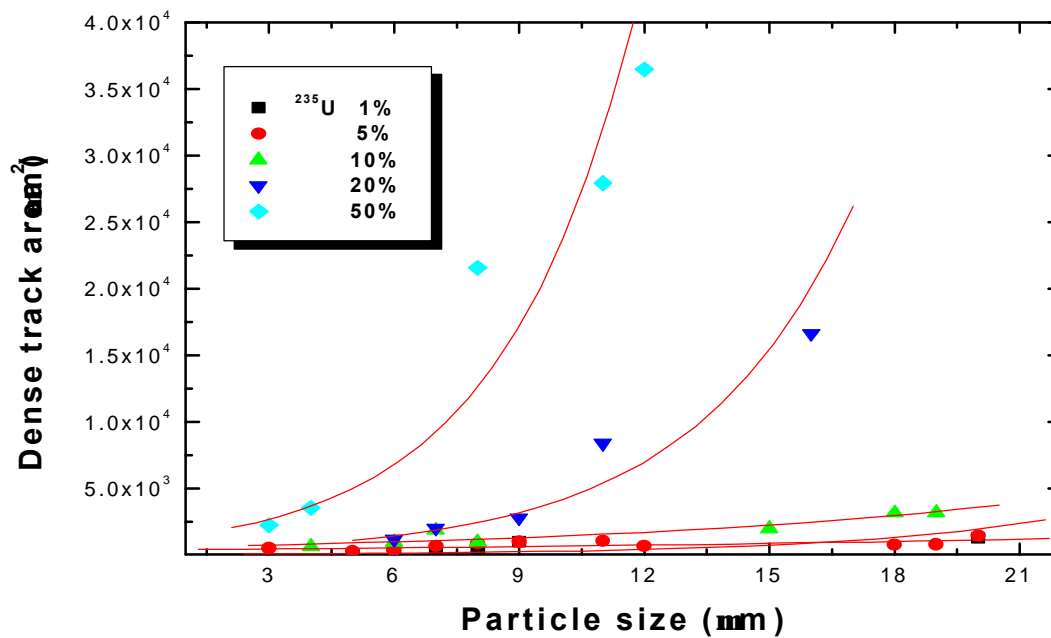


Fig. 3. Correlation of particle diameter and dense track area.