2002 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

고체트랙검출기에 의한 우라늄 입자의 핵분열트랙 측정

Measurement of Fission Track of Uranium Particle by Solid State Nuclear Track Detector

손세철, 표형열, 지광용, 김원호

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

본 연구에서는 우라늄을 함유한 입자의 핵분열 트랙 형태를 고체상태 핵분열트랙 검출기를 이용하여 측정한 결과에 대해 검토하였다. 우라늄을 함유한 실리카 입자와 산화우라늄 입자는 각각 약한 산성 매질하에서 실리카 분말 입자에 우라늄을 흡착시키는 방법으로 제조하거나 산화우라늄 펠렛에 laser ablation 하는 방법으로 제조하였다. 우라늄을 함유한 실리카 입자 및 산화우라늄 입자에 대한 핵분열 트랙은 Lexan 검출기를 이용하여 검출하였다. 우라늄에 의한 핵분열 트랙의 크기 및 형태는 우라늄 입자의 크기와 입자내 우라늄의 함량에 의존하는 것으로 나타냈다. 본 연구에서는 또한, 핵분열 트랙의 반경과 우라늄 입자의 지름 사이의 상관관계에 대해서도 검토하였다.

Abstract

In this study, we discussed results of the measurement of fission tracks for the uranium containing particles by solid state nuclear track detector. Uranium containing silica and uranium oxide particles were prepared by uranium sorption onto silica powder in weak acidic medium and laser ablation on uranium pellet, respectively. Fission tracks for the uranium containing silica and uranium oxide particles were detected on Lexan plastic detector. It was found that the fission track size and shapes depend on the particle size and uranium content in particles. Correlation of uranium particle diameter with fission track radius was also discussed.

1. 서 론

핵 물질을 취급하는 시설주변에서 채집된 시료로부터 취한 개별 입자들에 대한 화학적 및 동위원소적 측정기술에 대한 관심이 크게 증가하고 있다. 그것은 이들 측정기술이 핵 활동의 유무를 추적하고 확인하기 위해 수행되는 핵 사찰 업무와 관련하여 하나의 효과적인 분석 방법이 될 수 있기 때문이다. 핵 물질을 분석하기 위한 방법 중에서 핵분열 트랙 기입기법(fission track registration technique, FTRT)을 이용하는 방법은 극 미량의 입자시료를 분석하는데 적용하기가 적합한 분석방법 중에 한가지 방법이다. 운모, 유리 및 합성 플라스틱 등과 같은 절연성 물질에 대한 핵분열 트랙기입 현상이 발견된 이후[1, 2] 여러 가지 형태의 물질들을 고체트랙 검출기로 사용한 FTRT 분석법이 많이 응용되어 왔다[3, 4]. 특히, 입자시료 내에 존재하는 핵 분열성 물질을 확인하고 그것을 분석하는데는 FTRT 방법이 매우 유용한 분석방법이 될 수 있다. 트랙 분석기술은 핵분열 단면적과 여기함수의 측정, 핵분열 트랙의 각도분포 측정, 중성자 속 측정, 광물질 내에 존재하는 핵 물질 분포 및 함량을 측정하는 일 등에 여러 장점을 갖고 이용되는 방법이다. 또한, 다량의 시료에 대한 상용분석을 고려하는 경우에도 트랙 분석기술은 조작이 단순하여 분석비용이 적게 드는 장점이 있어 매우 유리한 방법이다. 이 분석 방법은 개별입자를 다룬다는 관점에서 시료 내에 존재하는 분열성 핵 물질의 농도나 입자의 크기가 중요한 적용 요인이 될 수 있다.

우라늄 농축시설 등에서 채취한 미세 입자시료에 대한 분석은 우라늄을 함유한 입자의 물리화학적 특성을 분석하고 동위원소 비를 정확히 측정하는데 초점이 맞춰져 있다. 각기 다른 실험실에서 적용된 서로 다른 형태의 분석 방법들은 측정 불확도 및 검출한계와 관련하여 타당성 있는 결과가 산출되도록 보장되어야 한다. 이와 같은 일을 하기 위해서는 우라늄의 질량분포 폭이 좁은 입자들로 구성되고 특성이 잘 정립된 미세 질량의 우라늄 표준물질이 필요하다. 우라늄이 포함된 균일한 미세 입자를 제조하는 방법으로는 흡착 특성을 이용하는 방법, 분사 열분해법을 이용하는 방법 및 혼합 금속산화물을 고온에서 용융하는 용융법 등의 제조방법이 있다.[5, 6, 7].

본 연구에서는 우라늄이 포함된 미세 입자를 이용하여 이들 입자에 의한 핵분열 트랙의 형태를 측정하기 위한 실험을 수행하고 그 결과를 기술하고자 하였다. 우라늄이 포함된 입자는 약한 산성 매질에서 실리카 입자에 우라늄을 흡착시켜 제조하나 laser ablation 장치를 이용하여 산화우라늄 펠렛으로부터 제조하였다. 우라늄이 포함된 입자는 광학현미경과 scanning electron micrograph(SEM)을 이용하여 입자의 크기와 형태 등을 관찰하였으며, 입자의 성분은 electron probe micro analyzer(EPMA)로 분석하였다. 또한, 우라늄이 포함

된 입자는 Lexan 트랙 검출기를 사용하여 하나로 원자로에서 중성자 조사한 후 트랙 검출기 상에 나타난 핵분열 트랙의 형태 및 크기 등을 광학현미경을 이용하여 관찰하고 입자 크기에 따른 핵분열트랙 크기의 관계를 검토하였다.

2. 실 험

2.1 시약 및 기기

실리카 입자제조에는 tetraethyl orthosilicate(98%, Aldrich), ethanol(99.8% p.a., Merck), ammonium hydroxide(28-30%, Aldrich), 및 이온교환 처리한 물(Milli-Q, 18 MΩcm 이하)을 사용하였다. 우라늄을 흡착시킨 실리카 입자는 본 연구에서 제조한 실리카 입자 외에 상품화된 실리카겔(250-400 mesh, Aldrich) 및 실리카 bead(입자크기 = 3-10 ㎛, DR CHEM L-51)를 사용하여 만들었다. 산화우라늄 입자는 산화우라늄 펠렛을 laser ablation하여 만들었다. 우라늄 입자의 핵분열트랙 측정에는 Lexan 고체트랙검출기(GE plastic, Korea)를 사용하였으며, 중성자 조사는 한국원자력연구소 하나로 원자로를 이용하였다. 본 연구와 관련하여 우라늄을 포함하는 입자의 제조, 입자의 표면관찰, 성분분석 및 핵분열트랙 관찰 등에는 광학현미경(LEICA DMLP, MZ6), ICP-AES(JY 38 PLUS), ICP-MS용 laser ablation 장치, SEM 및 EPMA(JEOL JKA 8600) 등을 이용하였다.

2.2 실리카 입자제조

Tetraethyl orthosilicate(TEOS)를 이용한 실리카 입자제조에는 Stöber 등[8]의 방법을 참고하였으며, 제조방법은 다음과 같다. 20 mL vial에 ethanol 10 mL를 취하고 물 0.6 mL와 ammonium hydroxide 3 mL를 차례로 가하여 잘 섞은 다음 TEOS 1.4 mL를 첨가하여 잘 혼합하고 40±2 ℃의 oven에 넣어 60분간 aging하여 제조하였다. 실리카 입자는 여과 및 세척과정을 거친 후 회수하고 110 ℃의 oven에서 2시간 동안 건조하였다. 건조한 실리카 입자는 전기로를 이용하여 1 ℃/min의 조건으로 550 ℃까지 온도를 상승시킨 다음 550 ℃에서 5시간 동안 소결하였다.

2.3 산화우라늄 입자제조

산화우라늄 입자는 laser ablation 장치 내 sample chamber에 산화우라늄 펠렛을 장착하고 laser를 조사한 후 생성된 입자를 chamber 내부로 흐르는 아르곤 기체와 함께 외부로 배출시켜 filter housing에서 여과지에 여과되어 채취되도록 하여 회수하였다.

2.4 우라늄의 실리카 흡착

우라늄이 흡착된 실리카 입자는 약한 산성 매질하에서 우라늄과 실리카를 반응시켜 만

들었으며, 일반적인 흡착과정은 다음과 같다. 우라늄이 일정량 포함된 용액에 실리카 입자를 무게 측정하여 취한 다음 흡착용액의 pH를 3.7-5.2 범위에서 조절하고 교반기를 사용하여 12-24시간 교반한 다음 여과 및 세척과정을 거쳐 건조 후 회수하였다.

2.5 우라늄 입자의 핵분열트랙 측정

우라늄 입자의 핵분열 트랙을 관찰하기 위해서 수행한 일반적인 과정은 다음과 같다. 우라늄 입자를 입체 현미경하에서 미세 도구를 이용하여 취한 다음 여과지 표면에 부착시키고 그 위에 핵분열 트랙 검출용으로 많이 사용되는 Lexan 고체트랙검출기를 부착한 다음 중성자 선속이 $\sim 1\times10^{13}$ n/cm^2 · s 인 하나로 원자로에서 2분간 중성자 조사시켜 핵분열 트랙을 얻었다. 중성자를 조사시킨 Lexan 검출기는 냉각시간을 거친 후 회수하여 증류수로 세척하고 표면상의 오염물질을 제거하였다. 검출기는 60 ℃의 6.25 M NaOH 용액에서 10분간 에칭한 후 증류수로 다시 세척한 다음 자연 건조시켰다.

3. 결과 및 고찰

3.1 우라늄 입자의 형태 및 특성측정

본 연구에서 제조한 실리카 입자의 형태는 SEM을 이용하여 관찰하였으며, 관찰결과 실리카 입자는 지름이 약 1 ㎛인 구형으로 입자크기는 전체적으로 균일함을 나타냈다. 제조한 실리카 입자는 흡착 방법을 통해 우라늄-실리카 입자를 제조하는데 사용하였으며, 제조한 우라늄 입자에 대한 SEM 사진을 Fig. 1의 A에 나타냈다. 흡착 방법은 10 mL의 증류수에 0.150 g 정도의 실리카 입자를 정확히 무게 측정하여 취한 다음 ultrasonic cleaner를 사용하여 30분간 잘 분산시킨 후 약한 산성의 우라늄 용액을 일정량 취하여 가하였다. 흡착 용액의 pH를 조절하기 위해 10 M NaOH 용액을 소량씩 첨가하면서 용액의 pH를 4.70 (또는 4.23)으로 조절하고 24시간 동안 저속으로 교반해준 다음 추가로 24시간 방치하였다. 우라늄이 흡착된 입자는 증류수로 3회 세척한 다음 여과하여 회수하고 85 ℃의 oven에서 2시간 및 110 ℃에서 2시간 동안 건조시켰다. 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 4.70인 경우에는 320 mg-U/g-silica이었고 pH가 4.23인 경우에는 250 mg-U/g-silica로 pH가 높은 경우에 우라늄이 많이 흡착되는 것으로 나타났다.

한편, 실리카겔 입자에 우라늄을 흡착시킨 입자는 우라늄의 농도가 1 mM인 우라늄 용

액 25 mL에 상품화된 silica gel 분말 0.250 g을 가한 후 흡착용액의 pH를 4.0으로 조절하고 24 시간 동안 교반하여 제조하였다. 우라늄이 흡착된 실리카 입자는 여과 및 세척 후 진공 데시케이터 안에서 건조시켰다. Fig. 1의 B에는 제조한 우라늄 입자에 대한 SEM 사진을 나타냈다. SEM 사진에서 보여주듯이 입자의 크기 및 모양이 다양함을 알 수 있다. 실리카겔에 흡착된 우라늄의 양은 여과액 내에 남아있는 우라늄의 양을 ICP-AES로 정량하여 계산하였으며, 계산결과 실리카겔 1 gram 당 2 mM의 우라늄이 흡착된 것을 알 수 있었다. 우라늄이 포함된 흡착 용액의 pH 변화에 따른 실리카겔에 대한 우라늄의 흡착 특성 측정은 용액의 pH를 1.6-5.5 범위에서 변화시키고 흡착시간은 1-4일 범위에서 변화시키며 실험하였다. 실험결과, 흡착시간에 따른 우라늄의 흡착정도는 큰 변화가 없었으나 용액의 pH에 따른 우라늄의 흡착정도는 큰 차이를 보여 pH가 높은 경우에 실리카겔에 흡착된 우라늄의 양이 많아지는 경향을 나타냈다.

또한, Fig. 1의 C에는 실리카 bead에 우라늄을 흡착시킨 입자에 대한 SEM 사진을 나타냈다. 실리카 bead에 우라늄을 흡착시킨 입자는 우라늄의 농도가 50 mg/mL인 용액 0.1 mL를 취해서 증류수 20 mL로 희석하고 0.2 M 암모니아수를 가하여 용액의 pH를 4.0으로 맞춘 다음 실리카 입자 0.100 g을 넣고 다시 pH를 4.0으로 맞춘 후 12시간 방치하여 제조하였다. 우라늄이 흡착된 실리카 입자는 0.45 ㎛ cellulose 여과지로 여과하고 증류수로 세척한 다음 85 ℃의 oven에서 2시간 동안 건조시켰다. 흡착된 우라늄의 양은 여과액 내에 남아 있는 우라늄의 양을 ICP-AES로 분석하여 계산하였으며, 실리카 bead에 흡착된 우라늄의 양은 36.26 mg-U/1.0 g-silica bead 이었다.

Fig. 1의 D에는 산화우라늄 펠렛에 laser를 조사하여 회수한 산화우라늄 입자에 대한 SEM 사진을 예로 나타냈다. 이 방법에 의해서 생성된 우라늄 입자는 그 크기가 수 nm에서 수 ㎛에 이르는 다양한 크기를 나타내고 있으며, 우라늄 입자의 형태도 다양함을 알 수 있었다.

3.2 우라늄 입자의 핵분열트랙 측정

우라늄을 흡착시킨 실리카 입자 및 산화우라늄 입자에 대한 핵분열 트랙은 소량의 우라늄 입자를 여과지 표면에 분산하여 부착하고 그 위에 트랙검출기인 Lexan을 여과지 표면에 밀착하여 부착한 후 중성자 조사하여 얻었으며, 각각의 경우에서 얻은 핵분열 트랙형태에 대한 예를 Fig. 2에 나타냈다. 우라늄을 흡착시킨 실리카 입자의 경우에는 Fig. 2의 A에서 보여주는 바와 같은 형태를 나타냈다. 이 경우에는 입자의 크기에 따라 핵분열트랙의 크기도 달라짐을 나타냈으며, 전체적인 핵분열트랙의 모양은 트랙의 반경이 20-30 ㎛ 정도인 전형적인 sun-burst 형태를 나타냈다. 우라늄을 흡착시킨 실리카겔 입자의 경우에는 Fig. 2

의 B에서 보여주는 바와 같이 상당히 큰 핵분열 트랙을 관찰할 수 있었다. 이 결과는 제조한 우라늄 입자의 크기도 50-100 ㎛ 정도로 상당히 크고 실리카에 흡착된 우라늄의 양도 많았기 때문인 것으로 판단된다. 또한, 이 경우에는 강한 핵분열로 인하여 트랙의 중심부분이 함몰되는 현상도 나타났으며, 핵분열 트랙의 크기도 커서 정확한 트랙의 반경을 측정하기가 곤란하였다. 우라늄을 실리카 bead에 흡착하여 얻은 입자에 대한 핵분열 트랙의 형태를 측정한 경우에는, 평균 입자지름이 5 ㎛ 정도인 입자를 약 5 mg 취하여 증류수에 넣고 흔들어 분산시킨 다음 일정량의 용액을 취하여 여과지 위에 점적하였다. 우라늄 입자가 위치한 부위를 광학현미경하에서 확인하고 표시한 후 여과지 위에 Lexan 검출기을 부착한 다음 하나로 원자로에서 2분간 중성자 조사시켰다. 핵분열 트랙을 관찰하는 경우에는 Lexan 검출기의 표면을 보호하기 위한 목적과 트랙의 관찰을 용이하게 하기 위해서 6×6 cm^2의 유리판에 검출기를 붙인 다음 광학 현미경하에서 digital image analyser(Leica QWin)를 이용하여 생성된 핵분열 트랙을 관찰하였다. 이 경우에는 핵분열을 일으키는 입자의 크기도 작고 흡착된 우라늄의 양도 상당히 작아 Fig. 2의 C에서 보여주는 바와 같이 핵분열트랙의 크기도 대략 지름이 25-70 ㎛ 정도인 것으로 나타났다. 산화우라늄 입자에 대한 핵분열트랙 형태는 Fig. 2의 D에 보여주는 바와 같다. 이 경우에는 좁은 범위의 동일 표면에 많은 수의 핵분열 트랙이 나타남을 알 수 있었으며 트랙의 크기도 여러 가지로 나타났다. 트랙의 크기로부터 알 수 있는 것은 제대로 된 모양을 갖는 트랙을 발생시킨 입자는 그 크기가 마이크론 정도의 입자인 것으로 판단되며, 입자 크기가 수백 nm 정도 이하인 경우에는 트랙의 크기가 아주 작거나 단일의 트랙만을 형성시키는 것으로 판단된다.

핵분열을 일으키는 입자에 중성자를 조사시키면 검출기 표면에 핵분열 트랙이 나타나며, 이 트랙으로부터 핵분열을 일으킬 수 있는 최소 각도인 critical angle of incidence θ를 측정하면, tan(critical angle of incidence θ) = 우라늄 입자지름/핵분열 트랙반경의 관계식이 성립된다[9]. 이 값을 이용하여 핵분열 트랙의 반경을 측정하면 핵분열 트랙을 일으킨 우라늄 입자 크기를 추정할 수 있다. 입자의 지름이 1~10 ㎛인 우라늄-실리카 bead 입자를 대상으로 중성자 조사하고 핵분열 트랙의 반경을 측정한 결과, 트랙의 반경이 25~70 ㎛인 것으로 나타났다. 이들 측정값을 이용하여 우라늄-실리카 bead 입자의 지름과 핵분열 트랙의 반경 사이의 관계를 도시하여 계산한 결과, critical angle 값이 θ= (5.3±2.7)。로 비교적 θ의 범위가 넓게 나타났으며, 이 결과는 Dwivedi[10]가 Lexan 고체검출기에 대해 제시한 (3.5±0.1)。의 값보다는 약간 큰 것으로 나타났다. 이 결과는, 실리카 bead의 일부분에만 우라늄의 흡착이 이루어졌거나, 동일한 크기의 우라늄-실리카 bead에 흡착된 우라늄의 양이 일정하지 않은 불균일 흡착의 결과로 판단된다.

4. 결 론

본 연구에서는 우라늄을 함유한 입자의 핵분열 트랙 형태를 고체상태 핵분열트랙 검출기를 이용하여 측정한 결과에 대해 검토하였다. 우라늄을 함유한 실리카 입자와 산화우라늄 입자는 각각 실리카 분말 입자에 우라늄을 흡착시키는 방법과 산화우라늄 펠렛에 laser ablation 하는 방법으로 제조하였다. 우라늄이 포함된 입자는 광학현미경과 scanning electron micrograph(SEM)을 이용하여 입자의 크기와 형태 등을 관찰하였으며, 입자의 성분은 electron probe micro analyzer(EPMA)로 분석하였다. 우라늄을 함유한 실리카 입자 및 산화우라늄 입자에 대한 핵분열 트랙은 Lexan 검출기를 이용하여 검출하였다. 핵분열 트랙의 크기 및 형태는 우라늄 입자의 크기와 우라늄 함유 정도에 의존함을 나타냈다. 본 연구에서는 또한, 핵분열 트랙의 반경과 우라늄 입자의 지름 사이의 상관관계를 검토하였다.

후 기

본 연구는 과학기술부의 원자력중장기연구개발사업의 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).
3. R.L. Fleischer, P.B. Price, and R. . Walker, "Nuclear Tracks in Solids", University of California Press, Berkeley, (1975).
4. P.H. Fowler and V.M. Clapham, "Solid State Nuclear Track Dectors", Pergamon Press, Oxford, (1982).
5. P. Michard, E. Guibal, T. Vincent, and P. Le Cloirec, *Micro. Mater.*, 5, 309 (1996).
6. D.P.L. Simons, A. Lagerwaard, P.H.A. Mutsaers, and M.J.A. de Voigt, *Nucl. Instru. Meth. Phy. Res. B*, 158, 517 (1999).
7. K. Raptis, C. Ingelbrecht, R. Wellum, A. Alonso, W. De Bolle, and R. Perrin, *Nucl. Instru. Meth. Phy. Res. A*, 480, 40 (2002).
8. W. Stöber, A. Fink, and E. Bohn, *J. Colloid and Inter. Sci.*, 26, 62 (1968).
9. K.K. Dwivedi and S. Mukherji, *Nucl. Instru. Meth.*, 161, 317 (1979).
10. K.K. Dwivedi, *Radiation measurements*, 27, 453 (1997).

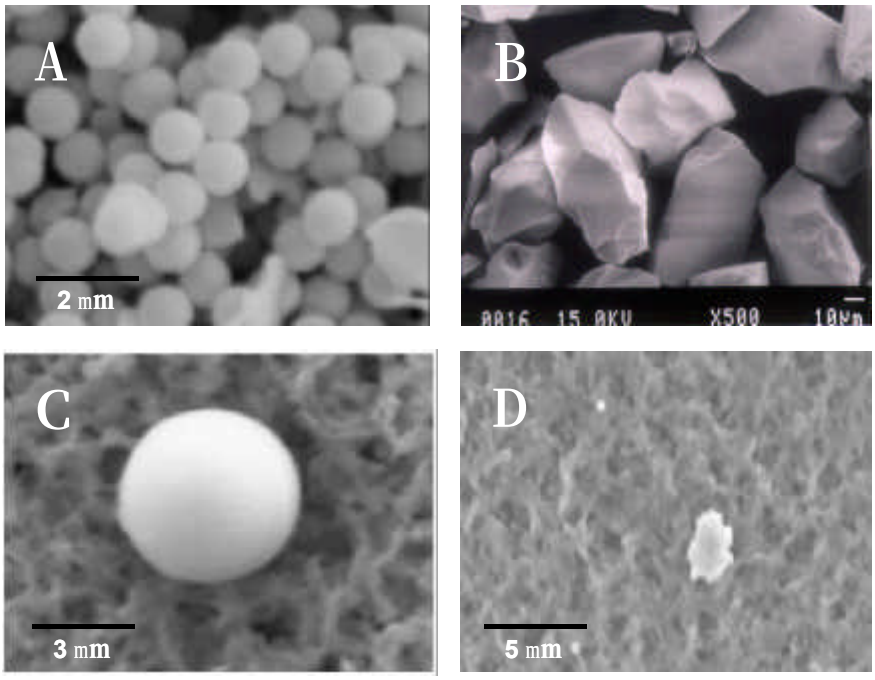

Fig. 1. 다양한 형태의 우라늄 입자에 대한 SEM 사진. A = 우라늄-실리카, B = 우라늄-실리카겔, C = 우라늄-실리카 bead, D = 산화우라늄 입자.

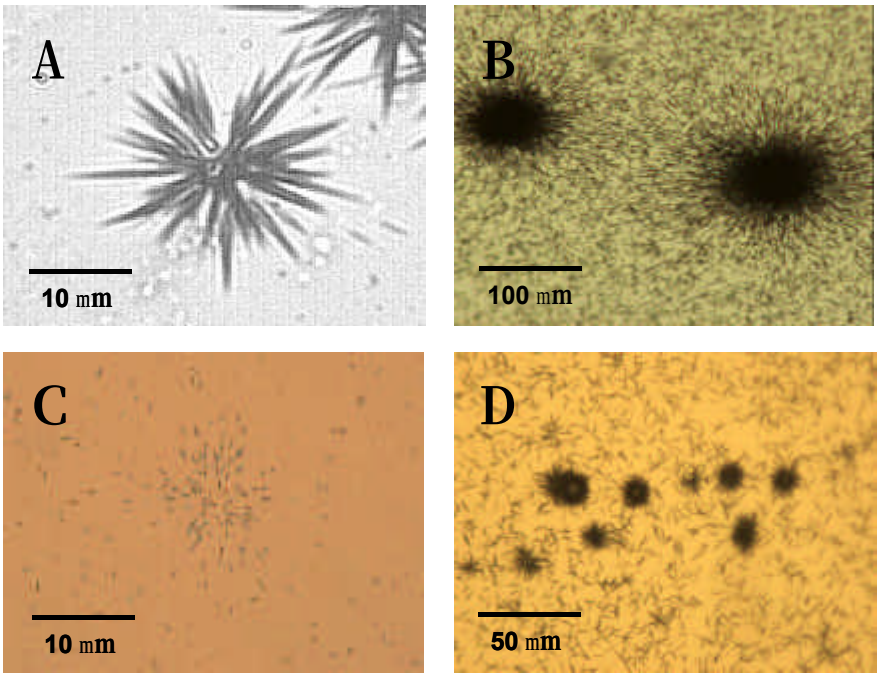

Fig. 2. 다양한 형태의 우라늄 입자에서 얻은 핵분열트랙 형태에 대한 광학현미경 사진. A = 우라늄-실리카, B = 우라늄-실리카겔, C = 우라늄-실리카 bead, D = 산화우라늄 입자.