

전착법 및 알파분광분석법에 의한 사용후핵연료중 Am-241 및 Cm-244 의 정량

Determination of Am-241 and Cm-244 in Spent Nuclear Fuels by Electrodeposition and Alpha-Spectrometry

조기수, 이창현, 송병철, 전영신, 김원호

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

Polyethylene 재질의 전착셀과 Pt 전극 및 SS 재질의 planchet 으로 구성되는 전착장치를 제작하였다. 0.1MNaHSO₄-0.53MNa₂SO₄ 매질에서 Am-241과 Cm-244을 1200 mA 에서 1시간 동안 전착하는 조건을 찾았다. 유기 착화제인 DTPA 는 Am-241의 전착율을 감소시키는 효과를 나타내었다. 유기물을 함유하지 않는 단순 매질과 유기성(DTPA-Lactic Acid) 매질에 Am-241과 Cm-244 가 각각 단일핵종 또는 혼합되어 있는 합성시료에서 두 핵종의 전착율을 측정된 결과 시료매질 및 혼합핵종에 의한 간섭 영향은 없었으며, Am-241은 91.7±1.9%, Cm-244는 99.2±0.97% 의 전착율을 각각 보였다. 사용후 핵연료 용액시료에 본 전착법과 알파분광분석법을 적용하여 Am-241과 Cm-244 를 정량하였다.

Abstract

Electrodeposition system consisting of deposition cell, Pt electrode, planchet and cell holder was installed in connection with constant power supplier. Optimum condition for the electrodeposition of Am-241 and Cm-244 was found to be 1200 mA and one hour in 0.1MNaHSO₄-0.53MNa₂SO₄ buffer solution. Diethylenetriaminepentaacetic acid(DTPA) gave a decreasing effect on electrodeposition of Am-241. Matrix effect on electrodepositions due to sample media with or without organic compounds(DTPA-lactic acid) was not found in a single nuclide or both of Am-241 and Cm-244. The average deposition yields are 91.7±1.7% in Am-241 and 99.2±0.97% in Cm-244, respectively. This method was applied to the determination of Am-241 and Cm-244 in spent nuclear fuels with alpha-spectrometry.

1. 서 론

사용후핵연료의 화학특성을 연구하기 위해서는 연소과정에서 생성된 핵분열생성물질 및 악티늄족원소의 함량을 정량할 필요가 있다. 특히 무거운 원소인 Am, Cm, Np, Pu 등의 초우란원소들은 연소 및 냉각이력 등에 따라 각 동위원소의 생성과 소멸과정이 복잡하므로 이들 핵종의 정확한 함량을 아는 것은 핵연료의 연소거동을 이해하는데 매우 중요하다. 이들 초우란 원소들은 알파방사선을 방출하므로 차폐시설 내에서 취급해야 되며, 따라서 시료처리 및 분석방법이 비방사성의 일반시료에 비하여 매우 제한적이다. 일반적으로 악티늄족 원소의 정량은 용매추출이나 이온교환법으로 개별분리 또는 균분리를 거친후 해당원소를 전착하여

α -분광분석법(α -Spectrometry)으로 정량하는 것이 널리 알려져 있다. 또는 이온교환 분리과정을 거친 후 질량분석법(Thermoionization Mass Spectrometry)으로 동위원소 비를 측정하여 정량하고 있다. 그외 고농도의 우라늄 용액중 Np 과 Pu를 Ion Chromatography 로 분리한 후 유도쌍플라즈마 질량분석법(Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry)으로 정량하거나[1] 환경시료중 Np 과 Pu를 HDEHP 로 추출하여 비색법으로 정량하는 연구보고도 있다[2]. 본 연구에서는 사용후핵연료중 Am과 Cm을 균분리한 후 두 원소를 동시에 전착하여 α -분광분석법으로 Am-241과 Cm-244를 정량하고자 하였다. 악틴족 원소에 대한 전착방법으로는 ammonium sulfate 매질을 사용하는 Talvitie 법[3]이 일찌기 알려져 있으며, 그외 mixed oxalate-chloride 매질[4], $\text{NaHSO}_4\text{-H}_2\text{SO}_4\text{-NH}_4$ buffer system[5], ammonium oxalate-ammonium sulfate[6], isopropanol 매질[7] 및 $\text{NaHSO}_4\text{-Na}_2\text{SO}_4$ [8] 매질 등을 이용하는 전착법이 보고되고 있다. 이들 방법중 $\text{NaHSO}_4\text{-Na}_2\text{SO}_4$ 매질은 pH 조절이 매우 용이하다. 즉, NaHSO_4 와 Na_2SO_4 가 완충용액으로 작용하며, 이들 황산염의 농도가 결정되면 pH가 자동으로 정해지고 또 시료주입 및 전착반응에 의해서도 pH 변화가 거의 없다. 본 전착 방법은 방사성시료에 적용할 때 매우 유리하며, 특히 시료를 차폐시설 내에서 매개체에 의한 조작으로 전착하는 경우 전착매질의 pH를 산 또는 염기를 사용하여 조절하는 것이 매우 번거롭다. 본 방법은 이와 같은 추가적인 pH 조절없이 일정한 황산염의 농도를 유지하므로 비교적 간편하게 전착할 수 있다는 데 이점이 있다. 따라서, 본 연구에서는 Am과 Cm이 함유된 사용후 핵연료 시료를 0.1M $\text{NaHSO}_4\text{-0.53M Na}_2\text{SO}_4$ 매질에서 전착한 후 α -분광분석법으로 방사능을 측정하여 Am-241과 Cm-244를 정량하고자 하였다.

2. 실험

기기 및 시약

알파에너지 측정에 사용된 α -Spectrometer는 EG&G/ORTEC 사의 제품이며 300mm^2 silicon surface barrier detector 가 안치된 Alpha-King module 이었다. 전-알파 방사능 측정에 사용된 Gross- α counting System은 Erberline Instrument Corporation 사의 Plastic scintillator와 Mini-scaler가 구성된 시스템 이었다. 전착장치는 그림 1과 같이 polyethylene 전착셀(inner dia 2cm x height 8cm)과 SS 재질의 전착 planchet(dia 1 inch x thickness 0.5m)을 금속재질의 받침대에 부착한 후 Pt 전극을 Cell 속에 넣어서 구성하였다. 일정한 전류를 공급하는 constant power supplier(max. 50V, 3A)는 주문 제작하여 사용하였다. 전착매질의 pH 측정에 사용한 pH meter 는 Tacussel 사의 Mninsis 6000 이었다. 0.1M $\text{NaHSO}_4\text{-0.53M Na}_2\text{SO}_4$ 의 전착매질을 제조하기 위해서 사용한 NaHSO_4 는 Junsei Co의 extra pure 급 이었고 Na_2SO_4 는 Merck GR 급 이었다. 시료중 유기물을 파괴하는 전처리 과정에서 Merck GR 급의 H_2SO_4 과 HClO_4 및 HNO_3 을 각각 사용하였다. 전착 종료시 산성매질을 중화하기 위해 전착셀에 주입한 NH_3 는 Merck GR 급 이었다. Am과 Cm의 전착효율에 대한 유기착화제의 영향을 검토하기 위해서 Aldrich Chem. Co 사의 Diethylenetriaminepentaacetic acid(DTPA)를 사용하였다. 그리고 전착 회수율을 측정에 사용한 Am-241 과 Cm-244의 표준용액은 모두 North America Scientific Inc. 의 제품으로 각각 $11.27\mu\text{ci}/5.0379\text{ g}$ 과 $10\mu\text{ci}/5.0297\text{ g}$ 의 방사능을 갖는 원용액을 각각 약 20 dps/mL 되도록 희석하여 사용하였다. 전착된 핵종의 알파선 측정에 사용한 표준 알파선원 (Amersham Co, UK)은 Am-241, Cm-244 및 Pu-239 가 거의 같은 비율로 혼합된 것으로 방사능이 3.28×10^5 dps 였으며 이 표준선원을 사용하여 계측기의 계측효율을 측정하였다. 이때 Cm-244 표준용액 및 표준알파선원의 방사능은 Cm-244의 반감기(18.1y)을 고려하여 보정한후 사용하였다.

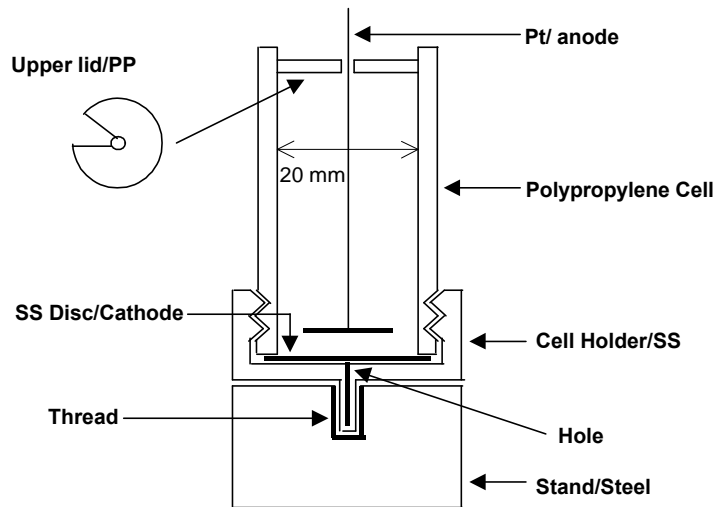


Fig. 1. Schematic Diagram of Electrodeposition Device

NaHSO₄-Na₂SO₄ 매질에서 Am 및 Cm 의 전착율 측정

0.1M NaHSO₄-0.53M Na₂SO₄(pH 1.85) 매질의 전착용액을 제조하고 Am-241(8.34 Bq ~ 12.51 Bq) 과 Cm-244(8.24 Bq ~ 13.66 Bq)을 각각 개별적으로 전착한 후 회수율을 측정하였다. 이때 최적 전착조건을 찾기 위하여 전류세기를 300 mA에서 1800 mA 까지, 전착시간을 30분에서 90분 까지 각각 변화시키면서 이들 핵종의 전착율을 측정하였다. 그리고 유기착화제인 DTPA 의 영향을 검토하기 위하여 농도를 0.0005M에서 0.01M 까지 변화시키면서 Am의 전착효과를 보았다. 전착이 완료되면 25% NH₃ 용액 1 mL를 가하고 1분간 더 전착한 다음 전원을 끈다. 전착셀을 해체하여 planchet 을 hot plate에서 가열하여 구운 다음 알파에너지지를 측정하여 전착량을 구하였다.

DTPA-Lactic Acid 매질시료에서 Am 및 Cm 의 전착율 측정

Am과 Cm을 함유한 사용후핵연료 시료용액은 분리단계에서 사용한 용리액이 0.03M DTPA-0.3M Lactic Acid 매질이므로 본 전착법을 적용할 때 이들 유기물의 영향을 검토하여야 한다. 따라서 위와같은 유기성분이 함유된 모의용액을 제조한 다음 이로부터 표 1의 시료 전처리과정을 거친 후 성분원소를 전착하여 회수율을 측정하였다.

Gross-alpha counting and alpha spectrometry 에 의한 Am-241 및 Cm-244 정량

Planchet 에 전착된 알파방출 핵종은 전알파측정과 알파분광분석법을 병용하여 개별 핵종을 정량하였다. 우선 단일 핵종이 전착된 경우 전알파 방사능 측정으로 Am-241 또는 Cm-244의 전방사능을 측정하여 전착율을 구하였다. 그리고 두 핵종이 동시에 전착된 경우 전알파 방사능 측정으로 전체 방사능을 측정한 다음 알파분광 분석법으로 개별 핵종의 알파 방사능을 측정하여 두 핵종의 방사능 비율을 구하였다. 구해진 각 핵종의 방사능 비율과 전알파 방사능으로부터 개별 핵종의 방사능을 구하고 여기에 비방사능(specific activity)을 적용하여 개별 핵종의 함량을 구하였다. 이 때 두 측정기의 계측효율은 혼합핵종의 표준선원(Am241/Cm-244/Pu-239)을 사용하여 구하였다.

사용후핵연료 시료용액중 Am-241 및 Cm-244 정량

0.03M DTPA-0.3M Lactic Acid 매질의 사용후핵연료 시료용액을 2500배 희석한 후 희석용액

0.5 mL 씩을 취하여 전착하였다. 표 1에 나타난 시료전처리 과정을 통하여 유기물을 파괴한 후 앞에서와 같은 방법으로 전착하였다. 전알파측정 및 알파 분광분석법으로 Am-241과 Cm-244의 방사능을 측정하고 다시 각각의 함량을 구하였다. 총 6개 시료에 대해 각각 2회씩 시료처리 및 전착 과정을 거쳤다.

Table 1. Sample pretreatment of DTPA and lactic acid matrix for the electrodeposition of Am-241 and Cm-244

시료전처리 과정	비 고
<ul style="list-style-type: none"> ■ 25 mL 비커에 Am 또는 Cm의 시료용액 일정량을 넣는다. ■ 600 μL 의 1.0M NaHSO₄ 와 400 μL 98% H₂SO₄ 를 가하고 hot plate에서 서서히 가열한다(유기물 파괴). ■ H₂SO₄ 와 NaHSO₄를 포함한 기름성분의 유기물이 탄화되어 검게 될 때까지 가열한다(~ 400 °C). ■ 2 μL 65% HNO₃와 200 μL 60% HClO₄ 를 가하여 검은 탄소 성분을 날려 보낸다. ■ 최종적으로 가열하여 여분의 H₂SO₄ 를 제거하고 소결시킨다 (~ 600 °C). ■ 최종 잔유물은 0.4 mM NaHSO₄ 와 0.1 mM Na₂SO₄ 로 되어 있다. ■ 잔유물을 4.2 mL H₂O 로 녹여 전착셀에 옮긴다. ■ 600 mL 1.0M NaHSO₄ 와 5.2 mL 1.0M Na₂SO₄를 가한다. ■ 이용액은 0.1M NaHSO₄-0.53M Na₂SO₄ 용액이 된다. 	<ul style="list-style-type: none"> ■ 용액이 튀지 않도록 서서히 가열한다. ■ 비커를 완전히 냉각시킨 후 산을 가한다. ■ Micro pipet를 사용하여 옮긴다. ■ 최종부피 10 mL

3. 결과 및 고찰

사용후핵연료에 존재하는 Am, Cm 및 Np 등의 초우란 원소의 함량을 안다는 것은 핵연료의 연소정도를 예측할 수 있을 뿐 아니라 연소과정에서 일어나는 여러가지 정보를 제공하고 있다. 특히 이들 초우란 원소는 반감기가 서로 다른 여러 동위원소들을 포함하고 있으며, 핵연료의 연소도에 따라 생성되는 각 동위원소의 양이 각 원소 중에서 Am-241, Cm-244 및 Np-237이 가장 많기 때문에 이들 핵종을 정량하는 것이 조사핵연료의 특성을 이해하는데 도움이 된다. 이들 원소중 Am과 Cm은 Pu 및 Np 등의 다른 원소들로부터 개별분리가 용이하지 않으므로 두 원소를 균분리하는 것이 바람직하다. 따라서 균분리된 두원소를 동시에 전착하여 α -분광분석법으로 개별핵종인 Am-241과 Cm-244를 각각 정량하고자 하였다.

0.1MNaHSO₄-0.53MNa₂SO₄ 매질에서 Am 및 Cm 의 전착율 측정

전착법으로는 앞에서 언급한 바와 같이 NaHSO₄-Na₂SO₄ 매질을 사용하는 것이 방사성시료 취급시 pH 조절에 있어서 번거러움을 피할 수 있는 이점이 있었다. 우선 그림 1과 같은 전착장치를 제작하였으며, Pt 전극(+극)의 표면적을 높이기 위해서 Pt 선을 나선형으로 구부려서 밑 부분이 넓은 면적을 갖도록 하였다. 알파선 방출 핵종이 전착되는 원판의 음극은 SS 재질로 제작하였다. 전착되는 음극의 표면적 및 전류밀도는 각각 314 mm² 과 0.38A/cm² 이었으며 양극과 음극사이의 간격은 약 1cm 정도 되게 하였다. 이들 값은 다른 연구자들의 값(1-3/cm², 480mm²)[2,6]들 보다 다소 낮은 값을 보이지만 이는 전착매질 또는 전착원소에 따라 달라질 수 있다. 0.1M NaHSO₄-0.53M Na₂SO₄ 매질은 다른 연구자들이 Pu 전착에[8] 적용한 것으로 본

연구에서도 같은 매질을 적용하였다. 또한 유기물을 함유한 시료일 경우 시료 전처리에 사용하는 NaHSO_4 과 H_2SO_4 의 양을 조절하여 최종적으로 0.1M NaHSO_4 와 0.53M Na_2SO_4 가 되도록 하고 있다. 즉, 최종 황산염의 농도에 따라 pH가 결정된다. 이것은 가해진 NaHSO_4 가 200 °C ~ 700 °C에서 열분해 되어 Na_2SO_4 로 되고 다시 H_2O 및 H_2SO_4 와 반응하여 NaHSO_4 로 된다[8]. 본 연구에서는 표 1에서와 같은 시료 전처리 과정을 거친 결과 최종적으로 0.1M NaHSO_4 -0.53M Na_2SO_4 의 완충용액이 되고 이때의 pH는 1.85 였다. 따라서 본 연구에서는 0.1M NaHSO_4 -0.53M Na_2SO_4 의 전착용액 10 mL을 사용하였으며 전착이 종료되기 직전에 25%의 NH_3 1 mL를 가하여 전해질을 알칼리성으로 하였다. 0.1M NaHSO_4 -0.53M Na_2SO_4 매질에서 전류세기, 전착시간 및 유기착화제의 첨가 등의 조건을 변화시키면서 Am-241의 최적 전착조건을 찾고자 하였다. 특히 시료 전처리시 가하는 NaHSO_4 는 착화제 역할을 하므로 악티나이드의 가수분해를 막아줄 뿐 아니라 시료를 증발건조시 전착에 방해되는 물질을 제거하는 효과가 있다[8]. 그림 2 에는 일정한 전착시간(1시간)에 전류세기를 변화시키면서 Am-241의 전착율을 측정 한 결과를 나타내었다. 1200 mA 까지는 전착율이 증가하여 최대값(~ 92%)을 보이다가 1500mA 이상에서는 오히려 감소하였다. 이와 같은 현상은 전류세기가 증가할수록 전착율이 증가하지만 1500 mA 이상에서는 과대 전류에 의해 많은 열이 발생하고, 또한 수분증발에 따른 부피감소로 pH가 낮아지게 되어 전착율이 낮아지는 것으로 생각된다. 그림 3에는 일정한 전류세기(1200 mA)에서 전착시간을 증가시키에 따라 Am-241의 전착율을 측정 한 결과인데 1시간 까지 증가하였으며 그 이상에서도 거의 같은 값을 보였다. 따라서 0.1M NaHSO_4 -0.53M Na_2SO_4 매질에서 Am 의 전착조건은 1200 mA 와 1시간이 최적 조건으로 나타났으며 이 조건은 같은 전착매질에서 Pu의 전착결과와 일치하였다[8]. 그림 4에는 DTPA 농도에 따른 Am의 전착효과를 측정하였는데 전반적으로 DTPA 농도가 증가할수록 전착율이 감소하였다. 이것은 DTPA와 Am과의 착물의 안정도 상수가[9,10] 크기 때문에 전착율이 떨어지는 것으로 생각된다. 그러나 ammonium oxalate-ammonium sulfate 매질에서 Pu 의 전착은 0.005M DTPA 까지 증가하다가 그 이상에서는 감소하는 것으로 나타났는데[6] 이것은 DTPA가 Pu과 착물을 만들므로 응집 (polymerization)을 막아주어 전착율을 높이지만 높은 농도의 DTPA에서는 Am과의 착물이 오히려 전착을 방해하는 것으로 설명하고 있다. 따라서 본 연구에서 사용후 핵연료 시료중 Am 전착은 DTPA를 첨가하지 않고 0.1M NaHSO_4 -0.53M Na_2SO_4 매질에서만 수행하였다. 그림 5에는 전착과정에서 전압변화를 나타내었는데 초기 9.2V에서 20분 후에는 7.2V 이고 1시간 후에는 6.8V 까지 떨어졌다. 이 결과는 다른 연구자들[8]의 결과(9.2V~5.7V)와 유사하였지만 감소폭이 조금 낮았다.

DTPA-Lactic Acid 매질시료에서 Am 및 Cm 의 전착율 측정

본 연구에서 사용한 시료는 사용후핵연료 용액중 Am과 Cm을 0.03M DTPA-0.3M Lactic Acid 용리액으로 chelation chromatography에서 분리한 용액이므로 사전에 시료와 동일한 매질의 모의 시료를 제조하여 이로부터 Am과 Cm의 전착율을 측정하였다. 시료 전처리 방법은 앞의 표 1에 나타난 것과 같이 NaHSO_4 와 H_2SO_4 을 가하여 서서히 가열하여 유기물을 파괴하였으며 최종적으로 탄소성분을 제거하기 위해서 질산과 과염소산을 가하여 고온으로 가열하였다. 본 전처리 과정을 거치면 최종 10 mL 용액속에 NaHSO_4 1 mmole 과 Na_2SO_4 5.3 mmole 이 존재하게 되므로 이 용액은 0.1M NaHSO_4 -0.53M Na_2SO_4 의 완충용액이 된다. 따라서, 전처리 과정이 요구되지 않는 단순한 매질의 시료일 경우 직접 0.1M NaHSO_4 -0.53M Na_2SO_4 용액 10 mL 만 가하여 전착을 하였다. 이상과 같이 시료전처리를 거치지 않고 직접 표준용액을 전착한 경우와 0.03M DTPA-0.3M Lactic Acid 매질의 모의 시료에서 단일 핵종을 전착한 결과와 Am과 Cm을 동시에 전착하여 각각의 핵종을 정량한 결과를 표 2에 나타내었다.

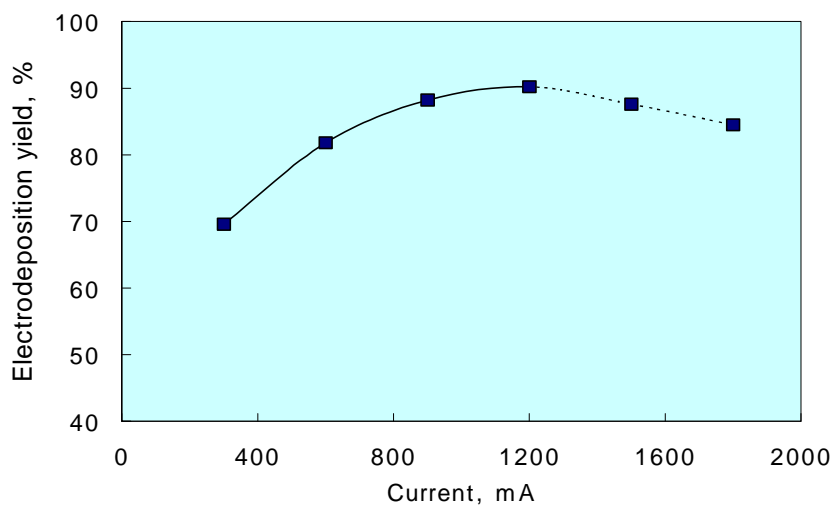


Fig. 2. Electrodeposition Yields of Am-241 as a Function of Current

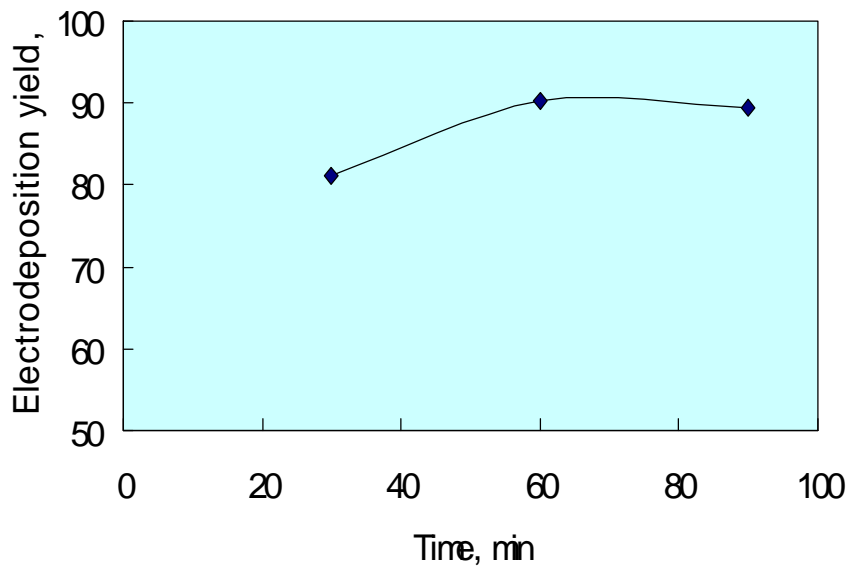


Fig. 3. Electrodeposition Yields of Am-241 as a Function of Time

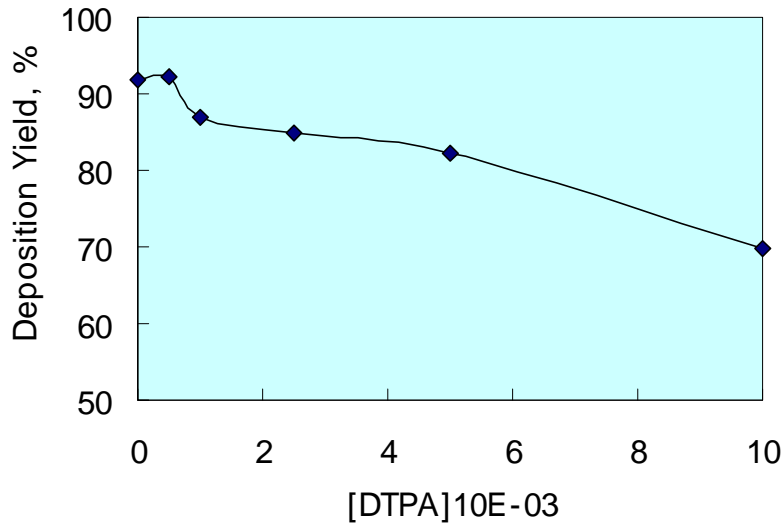


Fig. 4. Electrodeposition Yields of Am-241 as a Function of DTPA Concentrations

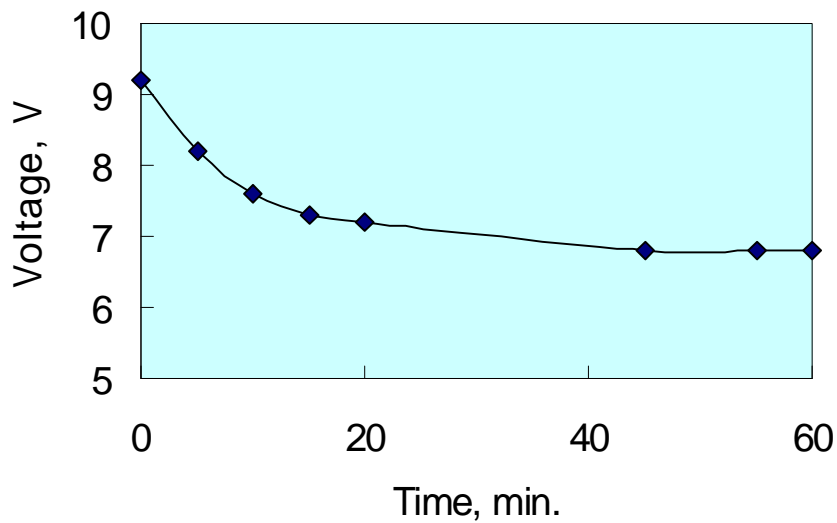


Fig. 5. Variation of Voltage as a Function of Time during the deposition of Am-241

표 2의 결과를 보면 우선 Am의 경우 표준용액 및 유기성분을 함유한 시료 모두 거의 동일한 전착율을 나타내고 있다. 그리고 Am과 Cm을 각각 개별적으로 전착한 경우와 Am과 Cm을 동시에 전착한 경우 모두 오차범위 내에서 같은 전착율을 보여주고 있으며 평균 91.7%(Am-241)의 전착율을 나타내었다. 그리고 Cm의 경우에서도 시료매질 및 전착핵종의 종류 등에 따라

Table 2. Electrodeposition yields of Am-241 and Cm-244 in different sample conditions

elements samples	Am-241			Cm-244		
	added(Bq)	found(Bq)	yield(%)	added(Bq)	found(Bq)	yield(%)
sample 1	8.34	7.52	90.2	13.66	13.28	97.2
sample 2	8.34	7.88	95.5	13.66	13.37	97.9
sample 3	8.34	7.47	89.6	13.66	13.55	99.2
sample 4	8.34	7.65	91.7	-	-	-
average			91.8±2.7			98.1±1.0
sample 5	12.51	11.5	91.9	8.24	8.29	100.6
sample 6	12.51	11.27	90.1	8.24	8.15	98.9
sample 7	12.51	11.1	88.7	8.24	8.26	100.2
sample 8	12.51	11.01	88.0	8.24	8.05	97.7
average			89.7±1.7			99.4±1.3
sample 9	12.51	11.95	95.5	8.24	8.15	98.9
sample 10	12.51	11.57	92.5	8.24	8.29	100.6
sample 11	12.51	11.59	92.6	8.24	8.3	100.8
average			93.5±1.7			100.1±1.0
total			91.7±1.9			99.2±0.97

* sample 1, 2, 3, 4 : 0.1MNaHSO₄-0.53MNa₂SO₄/개별핵종전착
 sample 5, 6, 7, 8 : 0.03MDTPA-0.3M LacticAcid/시료전처리/개별핵종전착
 sample 9, 10, 11 : 0.03MDTPA-0.3M LacticAcid/시료전처리/혼합핵종전착

전착율이 거의 같은 값을 보여주고 있으며 평균 99.2%의 전착율을 나타내었다. 이와같이 시료매질이나 전착되는 핵종의 수에 관계없이 착율이 거의 같은 값을 보이는 것은 본 연구에서 사용한 시료전처리 방법이 시료처리 과정에서 성분원소의 손실이 없으며, 또한 α -spectrometry에서 에너지에 따른 방사능 측정 및 전방사능 측정값이 정확도 및 정밀성에서 모두 높은 재현성을 나타내고 있다는 것을 말해주고 있다.

Gross-alpha counting and alpha spectrometry 에 의한 Am-241 및 C-244 정량

전착된 Am-241과 Cm-244의 정량은 전 알파측정과 알파분광 분석법을 동시에 적용하여 개별 핵종의 방사능을 측정하였다. Am-241과 Cm-244를 각각 독립적으로 전착한 경우 우선 전착된 시료를 α -spectrometry로 각 핵종의 α -에너지(Am-241 ; 5.48Mev, Cm-244;5.81Mev)를 측정하여 확인하고 다시 전알파 방사능을 측정하여 각각을 정량하였다. 그림 6에 사용후 핵연료 시료중 Am-241과 Cm-244의 α -스펙트럼을 나타내었다. 그리고 Am-241과 Cm-244를 동시에 전착한 경우는 α -spectrometry 로 각 에너지에 해당하는 피크의 면적으로부터 두 핵종의 방사능 비율을 구하고 다시 전알파 방사능을 측정한 다음 두 측정치로부터 개별 핵종의 방사능을 구하였다. 이때 피크의 분해능(FWHM)은 두 핵종 모두 20~30 kev 였다. 그림 7에 표준알파선원의 Am-241, Cm-244 및 Pu-239의 α -스펙트럼을 나타내었다.

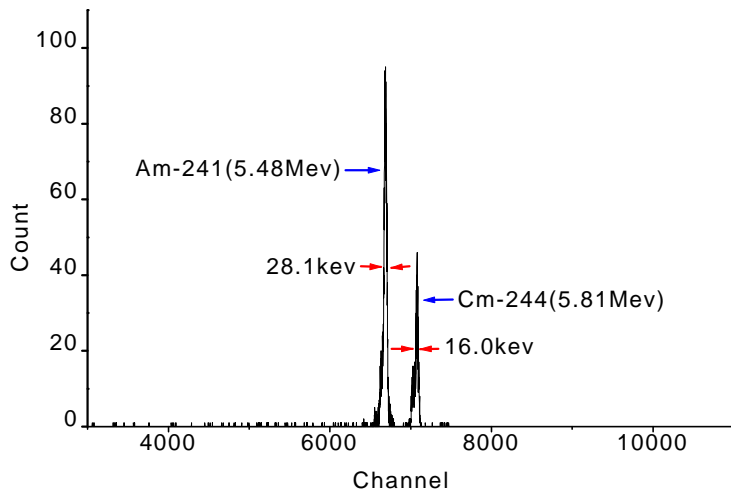


Fig. 6. Alpha Spectrum of Am-241 and Cm-244 in the Spent Nuclear Fuels Samples after Electrodeposition

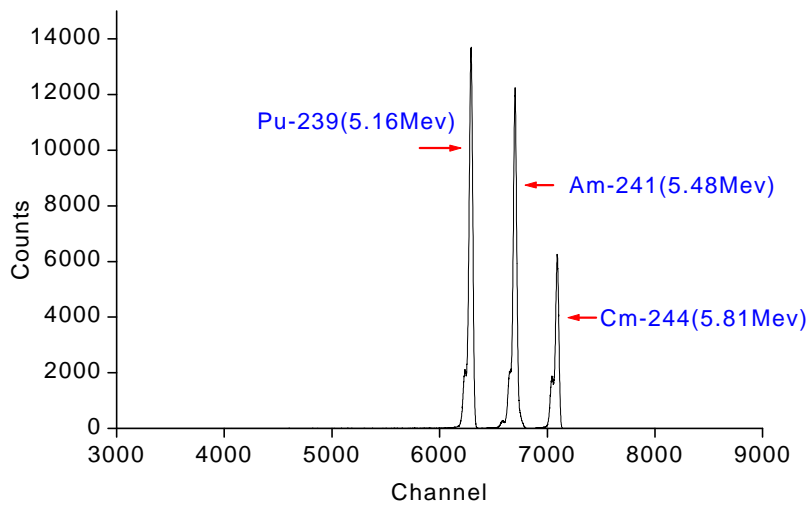


Fig. 7. Alpha Spectrum of Mixed Nuclides at the Standard Source

사용후핵연료 시료용액중 Am-241 및 Cm-244 정량

사용후핵연료 시료중 Am-241과 Cm-244의 양을 정량하기 위하여 2종류의 시료를 각각 3개씩 총 6개 시료를 취하였다. 각 시료당 2회씩 전착하여 α -분광분석법과 전알파 방사능 측정으로 각 핵종의 함량을 정량하였다. 그리고 표 3에는 같은 시료에 대한 α -spectrometry의 결과를 나타내었으며 희석용액 0.5 mL 중에 존재하는 각 핵종의 방사능과 그 때의 피크 분해능(FWHM)을 나타내었는데 평균 Am-241는 27.9kev, Cm-244는 24.9kev를 나타내었다. 표 3에 나타난 두 피크의 방사능 비율을 전알파 방사능 값에 적용하여 구한 각 핵종의 함량을 4 표에 나타내었다.

Table 3. Alpha-Spectrometry of Am-241 and Cm-244 in spent nuclear fuel samples after electrodeposition.

nuclide	sample	counts	cps	dps	FWHM(kev)
Am-241	T-1-Am	4216	0.8432	13.470	28.1
		4121	0.8242	13.166	29.0
	T-2-Am	3989	0.7978	12.744	27.4
		4068	0.8136	12.996	30.6
	T-3-Am	4313	0.8626	13.779	26.8
		4261	0.8522	13.613	29.8
	T-4-Am	5129	1.0258	16.386	26.6
		-	-	-	-
	T-5-Am	5172	1.0344	16.524	25.9
		5219	1.0438	16.674	28.9
	T-6-Am	5086	1.0172	16.249	26.0
		5159	1.0318	16.482	27.7
Cm-244	T-1-Cm	1683	0.3366	5.115	16.0
		1699	0.3398	5.164	28.8
	T-2-Cm	1531	0.3062	4.653	29.1
		1695	0.339	5.152	27.4
	T-3-Cm	1673	0.3346	5.085	24.5
		1707	0.3414	5.188	23.6
	T-4-Cm	2017	0.4034	6.131	21.9
		-	-	-	-
	T-5-Cm	2067	0.4134	6.283	24.2
		2035	0.407	6.185	22.6
	T-6-Cm	2066	0.4132	6.279	28.1
		2083	0.4166	6.331	28.1

Table 4. Determination of Am-241 and Cm-244 in spent nuclear fuel by electrodeposition followed by alpha spectrometry

nuclide	sample	x1(μg)	x2(μg)	aver.(μg)	prec.(1S)%	activ.(Bq)	ORIGEN2
Am-241	T-1-Am	6.115	6.19	6.152	0.86	737925.9	5.723
	T-2-Am	6.08	6.111	6.096	0.35	731089.4	5.861
	T-3-Am	6.544	6.487	6.516	0.62	781463.9	5.698
	T-4-Am	8.05	-	8.05	-	965510.6	6.223
	T-5-Am	8.016	8.01	8.013	0.05	961072.8	6.314
	T-6-Am	7.899	7.989	7.944	0.80	952797.0	6.369
Cm-244	T-1-Cm	0.0867	0.0919	0.089	4.09	275228.7	0.0697
	T-2-Cm	0.0829	0.0953	0.089	9.83	274643.0	0.0713
	T-3-Cm	0.09	0.092	0.091	1.55	280531.0	0.0693
	T-4-Cm	0.112	-	0.112	-	345269.0	0.0757
	T-5-Cm	0.1137	0.1109	0.112	1.76	346193.8	0.0769
	T-6-Cm	0.1137	0.114	0.1148	0.19	350972.1	0.0775

이때 적용한 비방사능(specific activity)[11]은 Am-241이 3.2416 ci/g 이고, Cm-244는 83.3178 ci/g 이었다. 표 4에서 보는 바와 같이 두 측정치가 Am-241의 경우 재현성(1S)이 1% 이내고 Cm-244의 경우는 T-1-Cm 과 T-2-Cm를 제외하고 2% 이내에서 서로 일치하였다. Cm-244의 재현성이 낮은 것은 생성된 Cm-244의 함량이 낮기 때문에 기인한 측정오차로 생각된다. 그러나 본 시료에 대한 Am-244와 Cm-244의 측정값이 계산한(ORIGEN2) 값보다는 높은 결과를 보여주고 있다. 이것은 본 연구에서 화학적 방법으로 측정한 핵연료 시편과 평균 연소도 계산에 사용된 전체 대상 핵연료가 서로 일치하지 않은 것에서 기인하는 것으로 생각된다.

4. 결 론

일반적으로 전착법은 환경시료중 반감기가 긴 미량 악티나이드 원소정량에 이점이 있으나, 본 연구에서와 같이 비교적 함량이 높은 사용후 핵연료 시료에도 전착법을 적용하여 Am-241 및 Cm-244 과 같은 초우란 원소를 정량할 수 있었다. 따라서, 향후 Am 및 Cm 뿐만 아니라 사용후 핵연료에 존재하는 Np 및 Pu 등 기타 악티나이드 원소에도 본 전착법을 적용하여 그 활용도를 넓히고 아울러 타 정량법과 상호 비교하므로 전착법의 신뢰도를 높이고자 한다.

참고문헌

1. J. M. Barrero Moreno, M. Betti and J. I. Garcia Alonso, J. Analytical Atomic Spectrometry, 12, 355-361(1997).
2. A. P. Novikov, M. N. Mikheeva, O. I. Gracheva and B. F. Myasoedov, J. of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 223(1-2), 163-166(1997).
3. N. A. Talvitie, Analytical Chem., 44(2), 280-283(1972).
4. Kenneth W. Puphal and Donald R. Olsen, Anal. Chem., 44(2), 284-289(1972).
5. S. E. Glover, R. H. Filby, S. B. Clark and S. P. Crytdal, J. of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 234(1), 213-218(1998).
6. M. H. Lee and C. W. Lee, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 447, 593-600(2000).
7. C. Ingelbrecht, A. Moens, R. Eykens and A. Dean, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 397, 34-38(1997).
8. S. Bajo, J. Eikenberg, J. of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 242(3), 745-751(1999).
9. Arthur E Martell, "Stability Constants of Metal-Ion Complexes", Part II Organic Ligands Including Macromolecule Ligands, The Chemical Society, Burlington House, London, 1971.
10. D. D. Perrin, "Stability Constants of Metal-Ion Complexes", Part B Organic Ligands, Pergamon Press, 1979.
11. Lawrence Livermore National Laboratory, ESH Manual, Document 20.2, "LLNL Radiological Safety Program for Radioactive Materials", 1999.