

‘98 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

감마선 분광 분석에 의한 플루토늄 동위원소의 성분비 측정

Measurement of Plutonium Isotopic Composition by
Gamma-ray Spectroscopy

김종수, 신장수, 안진수

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

감마선 분광분석을 이용한 플루토늄 동위원소의 성분비 측정기술은 시료의 기하학적 특성에 의존하지 않으며, 물리적 및 화학적 성분 분석에 적용할 수 있다. 3 개의 인증 플루토늄 표준물질에 대한 성분비를 HPGe 시스템을 이용하여 측정하였다. 그 결과 ^{238}Pu 성분이 각각 0.223%와 0.268% 포함된 CRM 136와 CRM 137은 18.4%와 14.2%의 오차를 나타내고 0.01%의 ^{238}Pu 가 포함된 CRM 138은 76%를 보여주고 있다. 그러나 상대적으로 ^{239}Pu 와 ^{240}Pu 가 많이 포함된 3 개의 표준 물질에서 모두 1.6%와 9% 미만의 오차로 분석되었다. 그러므로 성분이 10% 이상 큰 플루토늄 동위원소의 분석에는 측정이 간편한 감마선 분광분석법이 효과적으로 활용될 수 있다.

Abstract

The technology of the analysis of plutonium isotopic ratio is independent of the measurement geometry and applicable to samples of physical and chemical composition. Three standard plutonium samples were measured in the HPGe system. The results showed that CRM 136 and CRM 137 containing ^{238}Pu (0.223%) and ^{238}Pu (0.268%) were 18.4% and 14.2% error and CRM 138 of ^{238}Pu (0.01%) was 76% error. However the analysis represented less than 1.6% and 9% error in the three standard samples of highly involved ^{239}Pu and ^{240}Pu . Therefore, gamma-ray spectroscopy is very effective in the plutonium isotope analysis, having greater than 10% in content.

1. 서 론

플루토늄의 감마선 스펙트럼 특성은 이의 동위원소 분포에 영향을 받으며, 이것은 burn-up에 의존한다. Low burn-up 플루토늄은 6~9% 범위의 ^{240}Pu 와 90% 이상의 ^{239}Pu 를 포함한다. ^{238}Pu 과 ^{241}Pu 는 각각 0.01~0.02%와 0.5% 정도이다. High burn-up 플루토늄은 50~70% 범위에 걸쳐 ^{239}Pu 가 포함되어 있으며, 20~30% 범위에는 ^{240}Pu , 3~10%에는

^{241}Pu 그리고 1~2%에는 ^{238}Pu 이 포함되어 있다. ^{241}Pu 과 ^{239}Pu 동위원소는 가장 두드러진 감마선 스펙트럼 특징을 제공한다. ^{241}Pu 의 감마선과 이의 딸핵종 ^{241}Am 은 high와 low burn-up 사이에서 가장 명백한 차이를 보여준다. 표 1은 가압 경수로에서의 burn-up에 따른 플루토늄 동위원소의 abundance를 나타낸다.

표 1. Burn-up에 따른 플루토늄 동위원소 Abundances

Burnup (MWd/t)	^{238}Pu (wt %)	^{239}Pu (wt %)	^{240}Pu (wt %)	^{241}Pu (wt %)	^{242}Pu (wt %)	^{241}Am (wt %)
2000	0.01	93.45	6.00	0.50	0.04	0.051
9000	0.10	87.10	10.00	2.50	0.30	0.253
17000	0.25	76.25	18.00	4.50	1.00	0.455
26000	1.00	58.00	25.00	9.00	7.00	0.911
39000	2.00	45.00	27.00	14.00	12.00	1.417

^{241}Pu 의 붕괴모형을 나타낸 그림 1을 살펴보면, ^{241}Pu 과 비교하여 긴 반감기의 딸핵종 ^{241}Am 은 대략 75년의 붕괴시간 동안 증가할 것이다. 플루토늄의 연대 측, ^{241}Am 의 최종 화학적 분리 이후의 시간은 ^{241}Am 과 ^{241}Pu 비로부터 알 수 있다. ^{237}U 의 짧은 반감기는 이의 모핵종 ^{241}Pu 에 빨리 평형상태가 된다는 것을 의미한다. ^{237}U 의 화학적 분리 다음 대략 7 반감기(99.9% 평형상태 기간, 45일) 후, ^{237}U 의 붕괴율은 ^{241}Pu 의 붕괴율과 같게 된다. 그 시점이 되면 ^{237}U 의 붕괴로부터 감마선은 ^{241}Pu 측정에 사용할 수 있다. 동일 플루토늄 동위원소에서 ^{241}Am 과 ^{237}U 붕괴로 인해 발생하는 감마선 스펙트럼의 또 다른 특징은 ^{237}Np 이다. 두 동위원소의 수 차례의 붕괴는 ^{237}Np 에 동일 여기상태로 되게 하여 동일한 감마선을 일으키게 한다. ^{241}Pu 의 딸핵종 ^{237}U 의 붕괴로부터 가장 강하고 유용한 감마선 또한 시료내 ^{241}Am 로부터 기여분을 가지고 있다. 따라서 ^{237}U 피이크에 ^{241}Am 의 기여에 대한 보정은 필수적이라고 할 수 있다.

2. 플루토늄의 감마선 스펙트럼 특징

^{241}Pu , ^{237}U 및 ^{241}Am 은 10keV부터 거의 1 MeV 에너지 범위에 걸쳐 감마선을 방출한다. 플루토늄의 성분분석을 위하여 가장 쉽게 사용할 수 있는 감마선영역은 120-420keV 이다.[1] 그림 2는 0-800keV 범위의 low burn-up과 medium burn-up 감마선 스펙트럼을 보여주고 있다.[2] 이 스펙트럼의 주요한 차이는 시료내의 ^{241}Pu (^{237}U)과 ^{241}Am 의 양의 차이라 할 수 있다. 특히 129.3keV의 ^{239}Pu 와 125.3keV의 ^{241}Am 은 특징적인 감마선 스펙트럼을 제공한다. 200keV에서 210keV 및 330keV 근처 영역은 매우 유사한 특성을 나타낸다. 152.7keV의 ^{238}Pu 의 피이크는 120~450keV의 에너지 영역에 하나의 감마선이 존재하기 때문에 148.6keV의 ^{241}Pu 감마선과의 성분비를 직접 구할 수 있다. 203.5keV와 129.3keV의 ^{239}Pu 는 각각 208.0keV와 148.6keV의 ^{241}Pu 에 인접해 있으며, $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ 비를 얻는데 사용된다.[3] ^{241}Pu - ^{237}U 평형상태가 1.5 개월 이상 되었다면, 208.0keV에서 ^{241}Am 기여는 무시할 수 있다.[4] ^{240}Pu 은 감마선 분광 분석에 의한 함량 결정에 가장 어려운 핵종이다. 왜냐하면 120~450keV 에너지 영역에서 160.3keV의 하나의 피이크만 존재하고, 이 피이크

의 분석은 161.4keV의 ^{239}Pu 와의 간섭 때문에 고분해능 HPGe로도 완전히 분해할 수 없기 때문이다. ^{241}Pu - ^{237}U 이 붕괴 평형에 도달된 후, 164.6keV ^{241}Pu - ^{237}U 는 측정에 사용할 수 있다. 단, 이 피이크 내의 ^{241}Am 기여에 대한 보정은 수행하여야 한다. 이 영역에서 피이크 면적을 얻기 위하여 ROI(Region of Interest) 합을 사용한다면, 우선 161.4keV의 ^{239}Pu 피이크를 분리할 수 있다는 가정하에서 160keV의 영역에서 미량의 ^{239}Pu 기여를 제거한다. 다음에 ^{241}Am 에 대한 보정 후, 160keV에서 ^{241}Pu 의 기여를 제거한다. 그러면 $^{240}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ 비를 얻을 수 있다.

3. 플루토늄 분석

플루토늄의 감마선 스펙트럼 분석에 있어서, 동위원소 성분비는 “self-calibration”이 가능하여 시료의 크기, 모양 그리고 측정상의 기하학적 특성에 의존하지 않는다. 따라서 교정이나 표준 물질 없이 임의의 시료에 적용할 수 있다.[5]

일반적으로 임의의 형태의 플루토늄 동위원소로부터 방출되는 특정 감마선에 대한 광전 피이크 계수는 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$C(E_j^i) = \lambda^i N^i BR_j^i \epsilon(E_j) \quad (1)$$

$C(E_j^i)$: 동위원소 i 로부터 방출된 감마선 j 의 에너지 E_j 에 대한 광전 피이크 면적

λ^i : 동위원소 i 의 붕괴상수

N^i : 동위원소 i 의 원자수

BR_j^i : 동위원소 i 로부터 방출된 감마선 j 의 분율(branch ratio)

$\epsilon(E_j)$: 에너지 E_j 를 갖는 감마선의 광전피이크에 대한 검출 효율
(시료와 검출기 사이의 검출효율, 기하학적 효과, 시료자체의 흡수, 물질 내에서의 감쇄 포함)

식 (1)를 동위원소의 원자 비(N^i/N^k)로 표현하면, 식 (2)와 같이 나타내진다.

$$\frac{N^i}{N^k} = \frac{C(E_j^i)}{C(E_m^k)} \times \frac{T_{1/2}^i}{T_{1/2}^k} \times \frac{BR_m^k}{BR_j^i} \times \frac{RE(E_i)}{RE(E_j)} \quad (2)$$

식 (2)에서 성분비의 계산은 상대효율 RE (Relative Efficiency)를 적용하며, 본 계산은 방사능의 절대값이 필요하지 않기 때문에 기하학적 요소가 제거되고 에너지 E_i 과 E_j 에서 효율 비는 시료 자체흡수, 시료와 검출기 사이의 물질에 의한 흡수, 그리고 고유 검출효율이 포함된다. 반감기 $T_{1/2}$ 와 분율 BR 은 핵자료로부터 알 수 있다.

120~450keV 에너지 영역에서 ^{238}Pu 은 152.7keV에서만 하나의 감마선이 존재한다. 감마선과 ^{241}Pu (148.6keV) 감마선을 식(2)에 직접 적용하면

$$\frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{241}\text{Pu}} = 1.96 \left[\frac{C_1}{C_2} \cdot \frac{RE_1}{RE_2} \right] \quad (3)$$

여기서, C_1 과 C_2 는 각각 ${}^{238}\text{Pu}(152.7\text{keV})$ 과 ${}^{241}\text{Pu}(146.6\text{keV})$ 의 광전피이크 면적이다. 1.96는 $T_1/T_2 \cdot BR_2/BR_1$ 에 의하여 계산된 값이며, T_1 은 ${}^{238}\text{Pu}$ 의 반감기, T_2 는 ${}^{241}\text{Pu}$ 반감기이다. BR_1 와 BR_2 은 각각 ${}^{238}\text{Pu}$ 와 ${}^{241}\text{Pu}$ 감마선 방출율이며, RE_1 과 RE_2 는 ${}^{238}\text{Pu}$ 와 ${}^{241}\text{Pu}$ 에 대한 상대 검출효율이다. 이와 같은 방법으로 ${}^{239}\text{Pu}/{}^{241}\text{Pu}$ 와 ${}^{240}\text{Pu}/{}^{241}\text{Pu}$ 에 대한 성분비를 구할 수 있다.

플루토늄의 절대 동위원소 분포는 ${}^{238}\text{Pu} + {}^{239}\text{Pu} + {}^{240}\text{Pu} + {}^{241}\text{Pu} = 1$ 이다. 따라서 ${}^{241}\text{Pu}$ 에 대한 분율은 식 (4)와 같이 나타낼 수 있으며, 마찬가지로 이 식을 적용하여 ${}^{238}\text{Pu}$, ${}^{239}\text{Pu}$ 그리고 ${}^{240}\text{Pu}$ 에 대한 분율을 구할 수 있다.

$${}^{241}\text{Pu} = \left[\frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{241}\text{Pu}} + \frac{{}^{239}\text{Pu}}{{}^{241}\text{Pu}} + \frac{{}^{240}\text{Pu}}{{}^{241}\text{Pu}} + 1 \right]^{-1} \quad (4)$$

${}^{242}\text{Pu}$ 는 감마선이 너무 미약하기 때문에 감마선 분광 분석으로 직접 결정할 수 없다. ${}^{241}\text{Pu}$ 분율은 식 (5)을 사용하였다.[6]

$${}^{242}\text{Pu} = 110 \cdot [{}^{241}\text{Pu}] \cdot [{}^{241}\text{Pu}] / [{}^{239}\text{Pu}]^2 \quad (5)$$

${}^{242}\text{Pu}$ 의 성분은 원자로의 운전이력에 의존한다. 원자로로부터 최근에 방출된 ${}^{242}\text{Pu}$ 의 계산을 위한 식 (5)는 방출된 날짜로부터 ${}^{241}\text{Pu}$ 의 붕괴에 대하여 보정이 필요하다. 이것은 Am을 화학적으로 최종 분리한 시점부터 ${}^{241}\text{Am}$ 과 ${}^{241}\text{Pu}$ 의 상호관계를 계산하여 ${}^{241}\text{Pu}$ 분율을 보정한다. 이러한 보정 방법은 $\pm 25 \sim 50\%$ 정도로 정확도가 매우 떨어져, $0.02 \sim 0.04\%$ 의 ${}^{242}\text{Pu}$ 가 포함된 low burn-up 플루토늄에 대하여는 좋은 결과를 얻을 수 없다. 그러나 $1 \sim 5\%$ 범위의 ${}^{242}\text{Pu}$ 가 포함된 high burn-up 플루토늄의 동위원소 보정에는 유용하다.

4. Filters

플루토늄 동위원소 분석에 있어서 59.54keV 의 ${}^{241}\text{Am}$ 감마선 계수율을 줄이기 위하여 filter를 사용하였다. HPGe 검출기에 filter를 사용하지 않는다면 이 ${}^{241}\text{Am}$ 피이크는 필요 이상의 dead time을 일으켜 100keV 에서 감마선과 X-선이 $150 \sim 165\text{keV}$ 영역에 간섭을 일으키게 된다. 일반적으로 filter는 59.54keV 감마선을 선택적으로 흡수하기 위하여 0.025cm 두께의 구리와 0.15 에서 0.3cm 사이의 카드뮴 판을 사용한다.[6] 적합한 방법은 100keV 영역의 피이크 높이 이하로 60keV 피이크 높이를 줄이기 위하여 filter를 설계하는 것이다. Filter가 너무 두껍게 되면 $120 \sim 200\text{keV}$ 의 중요한 플루토늄 피이크 강도를 감소시키게 된다. 적절한 filter의 선정 실험은 153keV 와 160keV 사이에서 투과율이 일정하고 sum peak가 포함되지 않게 하여야 한다.

5. 결 론

플루토늄 동위원소에 대한 성분비 측정을 위하여 120~420keV의 감마선 스펙트럼을 적용하였다. 이 에너지 영역에서 가장 많은 감마선 스펙트럼을 얻을 수 있는 ^{239}Pu 동위원소로 그림 4에 나타낸 바와 같이 상대 검출 효율을 구하였다. 위의 계산식들을 적용하여 3개의 인증 플루토늄 표준 물질에 대해 인증된 값과 본 측정 결과를 표 2에 나타내었다. 그림 4, 5, 6 그리고 7은 본 측정에 적용한 감마선 피이크들이다. CRM 138에서 $^{238}\text{Pu}(0.01\%)$ 는 인증값에 대하여 76%, 그리고 CRM 136와 137은 각각 18.4%와 14.2%의 비교적 큰 차이를 나타내었다. 그러나 성분비가 비교적 큰 ^{239}Pu 의 경우 측정오차는 CRM 138에서 1.9% 이다. 따라서 성분이 10% 이상 큰 플루토늄 동위원소의 분석에는 측정이 간편한 감마선 분광분석법이 효과적으로 활용될 수 있음을 보여주고 있다. 본 시료를 HPGe 검출기로 측정시 ^{241}Am 59.54keV에 대한 차폐효과 및 시료의 감마선 강도가 강한 이유로 dead time이 20% 정도 발생하였다. 이러한 요인들을 해결한다면 오차는 상당히 줄어들 것으로 판단된다.

참고문헌

1. R. Gunnink, J. E. Evans and L. A. Prindle "A Reevaluation of the Gamma-ray Energies and Absolute Branching Intensities of 238 , 239 , 240 , ^{241}Pu and ^{241}Am ," Lawrence Livermore Laboratory Report UCRL-52139 (October 1976).
2. J. F. Lemming and D. A. Rakel, "Guide to Plutonium Isotopic Measurements Using Gamma-ray Spectroscopy," Mound Facility Report MLM-2981 (August 1982).
3. P. A. Russo, S. T. Hsue, J. K. Sprinkle, "In-Plant Measurements of Gamma-ray Transmissions for Precise K-edge and Passive Assay of Plutonium Concentration and Isotopic Fraction in product Solutions," Los Alamos National Laboratory Report LA-9440-MS (1982).
4. H. Umezawa, T. Suzuki and S. Ichikawa, "Gamma-ray Spectrometric Determination of Isotopic Ratios of Plutonium," Journal of Nuclear Science and Technology 13, 327-332 (1976).
5. T. E. Sampson, S. Hsue, J. L. Perker, S. S. Johnson and D. F. Bowersox, "The Determination of Plutonium Isotopic Composition by Gamma-ray Spectroscopy," Nuclear Instrument and Methods 193, 177-183 (1982).
6. D. Reilly, N. Ensslin and H. Smith, "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials," Los Alamos National Laboratory LA-UR-90-732 (March 1991).

표 2. CRM 136에 대한 인증 물질의 Atom Percent와 본 계산의 비교

	Comparison	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu
CRM 136	Atom Percent	0.223	84.988	12.323	1.888	0.578
	This Measurement	0.264	84.100	13.080	1.777	0.780
CRM 137	Atom Percent	0.268	77.635	18.734	2.152	1.211
	This Measurement	0.306	76.361	20.192	1.952	1.170
CRM 138	Atom Percent	0.010	91.805	7.925	0.227	0.0330
	This Measurement	0.0176	93.554	6.180	0.193	0.0281

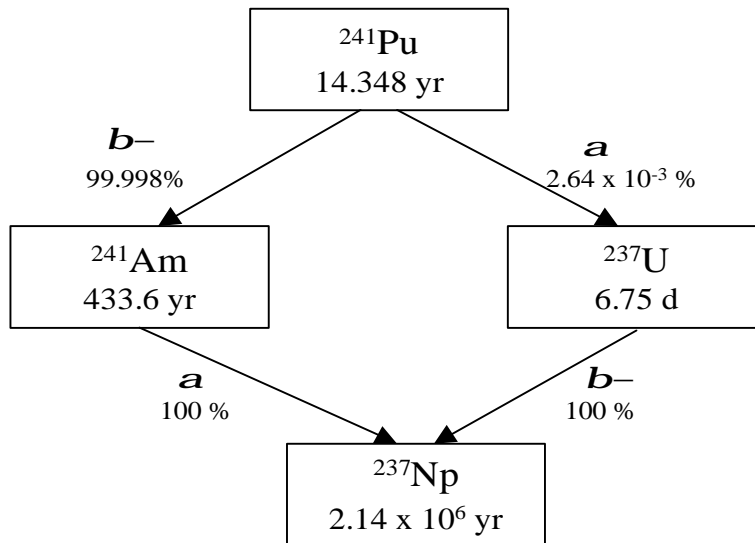


그림 1. ²⁴¹Pu 방사능 붕괴 모형

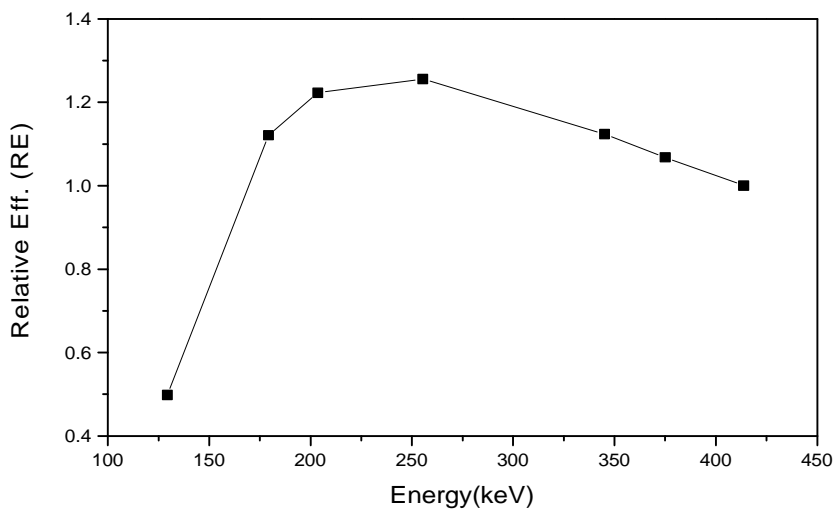


그림 3. 감마선 에너지 대 상대효율 곡선

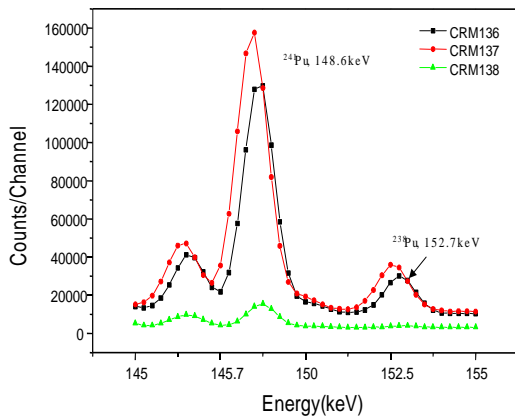


그림 4. $^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ 성분 계산에 사용된 플루토늄 광전 피이크

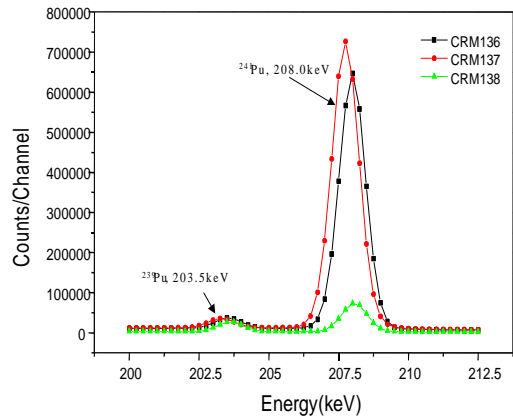


그림 5. $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ 성분 계산에 사용된 플루토늄 광전 피이크

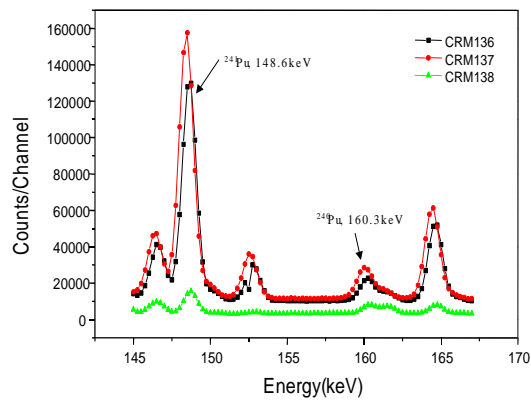


그림 6. $^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ 성분 계산에 사용된 플루토늄 광전 피이크

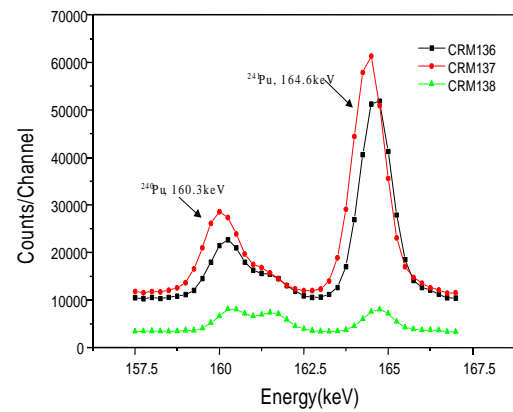


그림 7. $^{239}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$ 성분 계산에 사용된 플루토늄 광전 피이크