

동위원소희석 질량분석법에 의한 조사 후 하나로 핵연료 중 Pu 정량

전영신* · 손세철 · 김정석
한국원자력연구소, 원자력화학연구부
대전광역시 유성구 덕진동 150
(2003. 2. 14 접수, 2003. 4. 9 승인)

Determination of Plutonium in HANARO Irradiated Fuel by IDMS

Young Shin Jeon*, Sae Chul Son and Jung Suk Kim
Nuclear Chemistry Research Division, Korea Atomic Energy Research Institute
P.O. Box 105 Yuseong, Daejeon, 305-600, Republic of Korea
(Received Feb. 14, 2003, Accepted Apr. 9, 2003)

요 약 : 플루토늄 표준물 (NBL, CRM No.122)을 이용하여 정확한 농도의 플루토늄 용액을 만들고 이 용액에 대하여 동위원소희석 질량분석법과 조절전위 전기량법으로 플루토늄을 정량하였다. 동위원소희석 질량분석법에 의한 결과는 약 0.9 $\mu\text{g-Pu}$ 시료량의 크기에서 모액 플루토늄의 농도에 대하여 얻어진 측정값의 비는 1.002176 ± 0.000452 이었으며, 상대 표준편차 0.045% (신뢰도 95%)의 좋은 정밀도를 보였다. 조절전위 전기량법에 의한 측정값은 사용한 시료량에 따라 0.9923~0.9960의 비를 보였다. 두 방법 간의 차이는 0.6~1% 범위 내에서 잘 일치하는 결과를 보였다. 따라서 조절전위 전기량법보다 좋은 결과를 보인 동위원소희석 질량분석법을 이용하여, 조사된 하나로 연소 핵연료봉을 상, 중 및 하단부분으로 구분하여 시료를 취하여 이를 용해하고 음이온교환 칼럼을 사용 분리한 플루토늄을 각각 정량 하였다. 이 결과 각각 그람 (fuel+clad) 시료당 1.155 mg, 2.483 mg 및 1.920 mg의 플루토늄 값을 얻었다.

Abstract : Two methods, IDMS (Isotope Dilution Mass Spectrometry) and controlled potential coulometry are compared by the determination of Pu for the NBL, CRM No.122, PuO_2 . The recovery of Pu was found to be 1.002176 ± 0.000452 within the relative standard deviation of 0.045% (95% conf. level) although a small size of sample (0.9 $\mu\text{g-Pu}$) was used in IDMS. The recovery using controlled potential coulometry were obtained in the range of 0.9923~0.9960. The analytical results of IDMS and controlled potential coulometry were good agreement within 0.6~1%. Base on these experiment results, The plutonium in HANARO irradiated fuel rod that separated portion of top, middle, and bottom were determined. The measured values of Pu are 1.155 mg, 2.483 mg and 1.920 mg in one gram of sample(fuel+clad), respectively.

★ Corresponding author
Phone : +82+(0)42-868-2467 Fax : +82+(0)42-868-8148
E-mail : ysjeon@kaeri.re.kr

Key words : plutonium, IDMS, irradiated fuel, coulometry

1. 서 론

원자로의 이용이 시작된 이래 사용후 핵연료와 재처리 과정에서 발생하는 폐기물 중 플루토늄의 정량분석을 위하여 많은 방법들이 연구 개발 되어왔다. 특히 플루토늄은 생체에 극히 유해하기 때문에 생물학적 영향을 줄 수 있는 강수, 해수, 퇴적토, 흙, 바위 등등의 자연 환경에서 이들을 감지할 수 있는 매우 낮은 농도의 검출 방법이 필요하게 되었다.

이의 감지 방법들로 x-ray spectroscopy 또는 α -particle counting 방법들이 방사능 방호에 이용되어 온 반면 γ -spectroscopy와 neutron-counting 방법들은 토양과 유기 생체 내에 있을 수 있는 플루토늄의 정량에 이용되어 왔다.^{1,6} Calorimetric 방법과 fluorescent x-ray 방법들은 고속증식로에 이용되는 핵연료의 제조공정에서 연속적으로 혼합 산화물 농도를 측정하는데 이용되어 왔다. 또한, 핵주기와 관련된 조사후 핵연료, 재처리 과정중의 시료, 안전조치차원의 핵물질 계량 및 핵분열 생성물에 대한 정량은 molecular absorption spectrometry, coulometry와 isotope dilution mass spectrometry (IDMS) 가 이용되어 왔다.⁷⁻¹³

분광분석법은 방사성 용액에 대하여 신속한 결과 요구되는 측정에 이용되며 측정범위로 수 mg/L에서 수 g/L 정도로 상대 정밀도는 약 1% 정도를 갖는다. 조절전위 전기량법은 이온의 산화 환원 전위차를 이용하는 방법으로 표준물의 검증에 사용되어지고 있다. 일상적 정확한 플루토늄의 정량을 위하여 전기량 적정법을 사용하고 있으며 불순물이 섞이지 않은 표준물 플루토늄의 경우 수 mg의 범위로 상대적 정밀도 약 0.1% 정도로 측정이 가능하다. 그러나 연소후 핵연료에는 많은 핵분열 생성원소들이 포함되기 때문에 플루토늄을 분리하여 측정하여야 한다. 플루토늄의 분리에 용매추출법이나 침전법 등이 이용될 수 있으나 작은 량을 정교하게 분리해내기 위해서는 이온교환수지 칼럼법을 사용하는데 이는 핫셀 (hot cell) 내의 작업이 쉬울 뿐만 아니고 분리효율이 높기 때문이다. 또한 사용후 핵연료의 용해는 진한 질산과 염산 등이 이용되기 때문에 묽은 산 용액에서 사용하는 양이온교환수지

법 보다 음이온교환수지법이 더 효율적이다. 우리늄을 포함한 대부분의 원소들이 진한질산 매질에서 음이온교환수지에 흡착되지 않거나 약하게 흡착되는데 비해 Pu(IV)는 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_6^{2-}$ 착물을 형성하여 음이온교환수지에 잘 흡착하기 때문이다.^{14,15}

동위원소희석 질량분석법은 높은 농도뿐만 아니라 매우 낮은 농도까지 정밀하게 측정 가능한 방법이다. 동위원소희석 질량분석법은 선택성과 정밀도가 매우 좋으며 미량의 시료나 고 방사능시료 등의 극한 상황의 시료에도 적용 가능하고 스파이크를 넣어 섞은 후는 정량적 취급을 하지 않아도 된다. 또한 동위원소의 방해만 피하면 다른 방해요인이 거의 없는 장점이 있다.¹⁶

본 실험은 플루토늄 정량분석에서 동위원소희석 질량분석법과 조절전위 전기량법의 두 방법에서 얻어지는 결과를 상호비교하였고, 동위원소희석 질량분석법은 일반적으로 낮은 농도로 희석하게 되는데 이에 따른 희석오차를 알아보았다. 이를 바탕으로 연구용 원자로 (하나로)에서 조사된 핵연료에 이 방법을 적용하여 플루토늄을 정량하였다. 연구용 원자로인 하나로 핵연료는 알루미늄 매질에 고밀도 U_3Si 화합물인 작은 입자를 분산시켜 만든 핵연료를 사용하고 있으며, PWR 핵연료와는 연소 거동이 다르고 상대적으로 Pu의 생성량이 미량이어서 세심한 분리 조작이 필요하다. 따라서 이러한 방사능을 갖는 미량시료의 Pu 정량은 동위원소 희석법으로 정량하는 것이 가장 바람직하다고 생각된다.

2. 실험

2.1. 시 약

본 실험에 사용된 플루토늄 표준물은 NBL (New Brunswick Laboratory)로부터 구입한 CRM (Certified Reference Materials) No. 122 (PuO_2)를 사용하였고, 동위원소 희석법에서 사용된 스파이크 (표준동위원소 표지물)는 Pu-242, IRMM-044 (Institute for Reference Materials and Measurements)를 사용하였다. 사용후 핵연료중 플루토늄의 분리는 음이온교환수지, BIO-RAD AG 1 X 8, Cl⁻ form, 100-200 mesh를 사용하였다. 플루토늄의 분리 및 전기량 적정에 사용한 $\text{FeSO}_4 \cdot$

$7\text{H}_2\text{O}$, $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, Sulfamic acid, $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$, H_2O_2 , HCl 및 HNO_3 등은 Aldrich 또는 Merck사의 분석용 특급시약이었다. 플루토늄의 조절전위전기량 적정에 사용한 지지 전해질은 1 M HCl 매질 1 L에 포화 AlCl_3 용액, Fe 용액 (5 mg Fe/mL) 및 1.5 M sulfamic acid 용액을 각각 8 mL, 1 mL 및 8 mL 씩 첨가한 지지 전해질을 사용하였다.

2.2. 기기

동위원소비 측정에는 열 이온화 질량분석기 (Finnigan MAT 262, TIMS)를 사용하였다. 시료의 희석 및 스파이크를 섞는 등의 모든 실험은 무게 기준으로 하였으며 이때 사용한 저울은 Mettler AT201 전자저울을 사용하였다.

조절전위전기량 적정에는 Potentiostat/Galvanostat (EG & G PARC 263A), Digital coulometer (Scribner 279A) 및 Titration cell system (EG & G PARC 377A)으로 구성된 전기량 적정장치를 이용하였다. 본 실험은 납 차폐 시설 및 glove box에서 수행하여 방사성 시료로부터의 피폭을 막았다.

2.3. 실험방법

2.3.1. 플루토늄 모액 준비

동위원소희석 질량분석법과 조절전위전기량 적정법의 비교 시험에 사용한 플루토늄시료는 산화플루토늄 (NBL CRM, No. 122, PuO_2 powder, Pu = 87.790 wt.%)이었다. 이를 0.5 g 정도 정확히 무게를 달아 취하고, 14 M HNO_3 -0.05 M HF 혼산 용액 20 mL를 가하여 용해하고, 10 mL 정도의 70% 질산을 더 넣어 완전용해 되도록 하였다. 여기에 0.1 M HNO_3 을 넣어 50 mL 부피가 되도록 하였으며, 이의 비중을 측정하였다. 이와 같이 만들어진 플루토늄 모액의 농도는 붕괴상수를 고려하여 재 계산한 결과 7.0307 mg Pu/g solution 이었다.

2.3.2. 동위원소희석 질량분석법에 의한 플루토늄 정량

2.3.1에서 준비된 모액을 스파이크 용액 (IRMM-044, Pu-242)과 농도가 거의 같도록 약 730배정도 0.1 M HNO_3 으로 희석하여 9.5433 μg Pu/g solution을 준비하였으며 이 용액을 동위원소희석 질량분석법에 사용하였다. 1 mL 부피의 작은 유리 바이알에 시료와 스파이크의 플루토늄 양이 대략 1:1이 되도록 하였다. 희석 시료 용액과 스파이크용액 0.1 mL씩을 취하여 정확히 무게

를 달아 혼합하였다. Barnstead/Thermolyne, Type 16700 Mixer를 사용하여 충분한 시간동안 완전히 섞어 균질용액이 되도록 하였다. 이중 1 μL 를 취하여 레늄 필라멘트에 점적하여 건조시킨 후 질량분석기 이온화 상자에 넣어 충분한 진공상태가 되도록 하였다. 이때 질량분석에 사용된 플루토늄 양은 스파이크 포함 약 0.9 μg 정도였다. Multi-Faraday Cup 검출기를 사용하여 동시에 모든 플루토늄 동위원소가 측정되도록 하였으며 한 불럭당 10회씩 3 불럭을 측정하여 통계적인 값을 얻었다.

2.3.3. 조절전위 전기량법에 의한 플루토늄의 정량

준비된 모액으로부터 플루토늄 양이 약 0.23~3 mg 되도록 취하여, 지지전해질 용액 25 mL를 이용하여 적정 셀에 옮겼다. 15 분간 아르곤 기체로 purging하여 용액 내 용존 산소를 제거하고 +250 mV(vs. SCE)와 +900 mV(vs. SCE)에서 30 μA , +560 mV(vs. SCE)에서 20 μA 의 전류가 얻어질 때까지 산화 또는 환원시켰다. 시료 내 플루토늄의 양은 3번째 단계에서 얻은 시료용액에 대한 전기량 측정값에서 blank 용액에 대한 바탕 전기량 측정값을 뺀 값으로부터 계산하였다.

2.3.4. 동위원소희석 질량분석법에 의한 하나로 연소 후 핵연료 중 플루토늄 정량

원격조종장치가 설치된 납차폐 시설에서, 연구용 원자로인 하나로에서 연소된 핵연료중 하나의 봉을 선택하여 상, 중, 하로 구분된 시료 3개를 (fuel+clad)를 취하였다. 약 0.1 g 정도를 정확히 무게를 달아 4 M HCl + 10 M HNO_3 와 1:1 HNO_3 로 용해하고, 이를 1:1 HNO_3 용액으로 희석하여 이중 1 mL를 취하였다.^{17, 18} 여기에 Pu-242 스파이크를 섞은 다음 증발 건조 한 후 여기에 2 mL 진한 HF와 0.5mL 1 M HClO_4 를 가하여 증발 건조 하였다. 이를 다시 0.5 mL 12 M- HCl 로 용해한 후 음이온교환수지 칼럼, 0.7 X 5 cm에 흡착시켜 6 mL 12 M HCl 을 통과시켜 우라늄과 플루토늄을 제외한 핵분열 생성물들을 분리하였다. 칼럼에 남아있는 플루토늄을 1.5 mL 0.1 M HI - 12 M HCl 을 이용 플루토늄을 우라늄으로부터 분리하여 질량분석으로 동위원소비를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 동위원소희석 질량분석법

동위원소희석 질량분석법은 정확하게 일정량 취한

시료에 스파이크 (Pu-242) 일정량을 정확히 무게를 달아 넣은 후 섞어 동위원소 평형이 이루어지도록 한 것과 또한 스파이크를 넣지 않은 시료에 대하여 각각 동위원소비를 측정하여 이들의 결과 및 취한 시료량과 스파이크량을 동위원소 평형식에 대입하여 플루토늄을 정량하는 방법이다. 여기에서 사용되는 식은 다음과 같다.

시료 용액중 플루토늄 농도를 C_x 로 하고, 스파이크 플루토늄 농도를 C_y 라 한다. 시료와 스파이크를 취한 무게를 각각, W_x , W_y 라하고 질량분석으로 얻어지는 각각의 평균원자량을 M_x , M_y 또한 Pu-239/Pu-242 의 비를 R_x , R_y 섞은 후 Pu-239/Pu-242를 R_b , 측정된 시료와 스파이크의 동위원소비의 합을 $\sum_x Ri$, $\sum_y Ri$ 로 하여 다음과 같은 식을 얻어 플루토늄 농도를 계산할 수 있다.

$$C_x = C_y \cdot \frac{M_x}{M_y} \cdot \frac{W_y}{W_x} \cdot \frac{R_y - R_b}{R_b - R_x} \cdot \frac{\sum_x Ri}{\sum_y Ri}$$

- C_x : 시료 중 플루토늄 농도
- C_y : 스파이크 플루토늄 농도
- M_x : 시료 중 플루토늄 평균원자량
- M_y : 스파이크 중 플루토늄 평균원자량
- W_y : 스파이크 취한 무게
- W_x : 시료 취한 무게
- R_y : 스파이크 중 Pu-242/Pu-239
- R_b : 섞은 시료 중 Pu-242/Pu-239
- R_x : 시료 중 Pu-242/Pu-239
- $\sum_x Ri$: 시료 중 Pu-239를 포함한 각 동위원소비의 합
- $\sum_y Ri$: 스파이크 중 Pu-239를 포함한 각 동위원소비의 합

여기서 사용한 NBL CRM No. 122, PuO₂의 플루토늄 동위원소들의 atom%는 Table 1에 나타내었으며, 순수 플루토늄 량은 87.790 wt.%이다. 그러나 이의 값은 1985년 1월 1일 기준으로 검정된 값으로 시간의 변화에 대한 붕괴상수를 고려한 값들로 환산되어 저야 한다. 따라서 $N = N_0 e^{-\lambda t}$ 식을 이용하여 2001년 1월 30일 기준으로 보정하였다, 각 동위원소 붕괴 상수를 고려하여 계산한 값을 Table 1에 비교 정리하였다. 또한 스파이크로 사용한 IRMM-044 동위원소 표준물의 동위원소비 조성은 Table 2에 나타내었다. 이는 1989년 6월 30일 기준이므로 이를 2001년 1월 30일을 기준으로 하여 플루토늄 동위원소 각각에 대한 붕괴상

수를 고려하여 환산한 계산값을 Table 2에 정리하였다. 또한 측정 동위원소비를 Table 3에 나타내었다. 이들 분석에서 얻어진 동위원소비 값들을 앞에 언급한 계산식에 대입하여 얻어진 플루토늄 값들을 Table 4에 보였다. 2.3.1에서 준비된 모액을 6회 취하고 이에 각각 spiking하여 정량한 결과 모액 플루토늄 농도 대비 얻어진 평균 실험값이 1.002%를 보였다. 많은 희석과 미량의 플루토늄을 사용하였음에도 불구하고 상대 표준편차 0.045% 로 매우 좋은 정밀도를 보였다.

따라서 얻어진 정량값을 볼 때 동위원소희석 질량분석법 정량시 희석에서 오는 오차가 그리 크지 않음을 본 실험을 통하여 알 수 있었다. 질량분석의 경우 기기의 성능에 따라 다르지만 본 실험에 사용된 질량분석기를 이용한 플루토늄 동위원소비 측정의 경우 2ng(10⁻⁹g)을 사용하여 좋은 결과를 얻은 예가 있다.¹⁹ 따라서 동위원소비측정이 가능한 범위까지 IDMS 정량이 가능하다고 볼 수 있으며, spike량을 포함한 (스파이크 1 : 시료 1) 검출한계는 실제 시료량 <2 ng 를 검출한계로 볼 수 있을 것이다. 본 실험에서 사용된 플루토늄의 량은 0.9 μg 정도이었다.

3.2. 조절전위 전기량법에 의한 플루토늄의 정량

플루토늄의 전기량 적정은 Pu(III)⇌Pu(IV) couple의 산화환원반응 특성을 이용한다. 조절전위전기량 적정과정은 +250 mV에서 Pu(IV)와 Fe(III)가 각각 Pu(III)와 Fe(II)로 환원되고, +900 mV에서는 Pu(III)와 Fe(II)가 Pu(IV)와 Fe(III)로 각각 다시 산화되며, +560 mV에서는 선택적으로 Pu(IV)만 Pu(III)로 환원된다. 따라서 미량의 금속 불순물이 있다하여도 플루토늄 정량에 영향을 받지 않는다.²⁰ 사실 NBL, CRM No.122 표준물 중에는 약 1.1% 정도의 금속성 불순물이 함유되어 있다. 전기량 적정법으로 얻어진 결과를 Table 5에 나타내었으며, 시료량에 따라 0.9923~0.9960의 플루토늄 모액에 대하여 얻어진 실험값의 비를 보였고, 측정편차는 0.01~0.13%범위를 보였다. 약 0.5 mg 정도의 시료에서 플루토늄 모액에 대하여 얻어진 측정값의 비가 제일 좋은 결과를 보였으며, 측정편차는 시료량을 제일 많이 사용한 3 mg 플루토늄 시료에서 제일 작음을 보였다. 동위원소희석 질량분석법과 조절전위 전기량법에 의한 플루토늄 정량분석 결과는 전기량 적정법에서 사용된 시료량에 따라 0.6 ~ 1.0% 내에 일치함을 보였다.

Table 1. The changes of Pu atom mass by radioactive decay for the NBL, PuO₂

Isotopes	1 Jan. 1985		30 Jan. 2001	
	Number of Atoms (base on 100 atoms)	Atom%	Number of Atoms (base on 100 atoms)	Atom%
Pu-238	0.0521	0.0521	0.0459	0.0416
Pu-239	87.305	87.305	87.264	87.748
Pu-240	11.539	11.539	11.519	11.584
Pu-241	0.9248	0.9248	0.4268	0.4292
Pu-242	0.1790	0.1790	0.1789	0.1799
Decayed atoms (%)	100		99.436	
Pu weight%	87.790		86.951	
Atomic Weight	239.191		239.071	

Table 2. The changes of Pu atom mass by radioactive decay for the IRMM-044 spike

Isotopes	30 Jun. 1989		30 Jan. 2001	
	Number of Atoms (base on 100 atoms)	Atom%	Number of Atoms (base on 100 atoms)	Atom%
Pu-238	0.0009	0.0009	0.00082	0.00082
Pu-239	0.0826	0.0826	0.08197	0.081973
Pu-240	0.0108	0.0108	0.00999	0.00999
Pu-241	0.0009	0.0009	0.000516	0.000516
Pu-242	99.9033	99.9033	99.90118	99.9052
Pu-244	0.0015	0.0015	0.001499	0.001499
Decayed atoms (%)	100		99.9959	
Atomic Weight	242.05602		242.0560	

Table 3. Results of measured Pu Isotope ratios for the mixed of CRM No.122 and IRMM-044

Sample	238/239	240/239	241/239	242/239
Dil. CRM #122	0.000613	0.132003	0.006030	0.002019
IRMM-440	0.010895	0.130750	0.010895	1209.483
Spiked No. 1	0.000822	0.131929	0.006448	1.227965
Spiked No. 2	0.000825	0.131958	0.006269	1.228624
Spiked No. 3	0.000824	0.131943	0.006359	1.228295
Spiked No. 4	0.001378	0.132317	0.005832	1.221129
Spiked No. 5	0.001423	0.131993	0.005459	1.222422
Spiked No. 6	0.001401	0.132155	0.005646	1.221776

Table 4. Results of the Plutonium (NBL CRM-122) measurement by IDMS

NBL, CRM-122 Stock solution	Pu(measured), μg	Pu(measured)/ Pu(std. stock solution)
9.5433 μg Pu/g solution	9.5686	1.0027
	9.5635	1.0021
	9.5664	1.0024
	9.5669	1.0025
	9.5568	1.0014
	9.5619	1.0019
X \pm sd(rsd)	9.5640 \pm 0.0042	1.0022 \pm .00045

Table 5. Results of the Plutonium(NBL CRM-122) measurement by coulometry

Pu taken, mg	Pu found, mg	found Pu/ taken Pu	X \pm sd, rsd
0.2308	0.2294	0.9941	0.9932 \pm 0.0013, 0.13(%)
0.2307	0.2294	0.9943	
0.2291	0.2272	0.9915	
0.2314	0.2298	0.9930	0.9960 \pm 0.0006, 0.06(%)
0.4795	0.4779	0.9967	
0.4828	0.4806	0.9953	
0.4839	0.4819	0.9959	0.9929 \pm 0.0008, 0.08(%)
0.4809	0.4791	0.9961	
0.9688	0.9622	0.9932	
0.9683	0.9611	0.9925	0.9923 \pm 0.0001, 0.01(%)
0.9701	0.9608	0.9938	
0.9670	0.9592	0.9920	
3.0221	2.9987	0.9923	
3.0235	2.9999	0.9922	

3.3. 하나로 핵연료중 플루토늄 정량

하나로 핵연료는 U-235의 농축도가 19.75% 핵연료로 61.4% U₃Si 와 38.6% Al의 조성을 갖으며, Al 매질에 고밀도 U₃Si 화합물의 미립자를 분산시켜 pellet 형으로 만들어진 연료를 금속 알루미늄이 감싸고 있다. 따라서 시료를 용해시킬 때 PWR 시료와 다르게 피복관을 분리할 수 없고 피복관과 함께 용해시켜 음이온교환수지 칼럼을 이용 플루토늄을 분리하고 Pu-242 스파이크를 이용하여 동위원소비를 측정, 동위원소희석 질량분석법으로 플루토늄을 정량하였다. 연소 핵연료봉 상, 중 및 하단부분의 플루토늄은 각각 1.155 mg/g(fuel+clad), 2.483 mg/g(fuel+clad) 및 1.920 mg/g(fuel+clad)의 함량을 보였다. 이 결과로 볼 때 중

간부분이 연소가 제일 많이 되고 차례로 하단, 상단부분의 순으로 연소가 많이 되었음을 알 수 있다. 이때 질량분석에 사용된 플루토늄은 역으로 환산하여 계산하면 40 ng 정도였다.

4. 결 론

NBL, CRM No. 122 플루토늄 표준물을 시료로 사용하여 동위원소희석 질량분석법과 조절전위전기량법에 의한 플루토늄을 정량 하여 이의 결과를 비교하였다. 시료량을 스파이크 농도에 준하여 정량하는 동위원소희석 질량분석법은 작은량을 사용하게 되고, 따라서 시료를 많이 희석하여야 하는데, 희석으로부터 오

는 오차를 상대적으로 시료를 많이 사용하는 조절전위 전기량법과 비교하였다. 동위원소희석 질량분석법에서 플루토늄 시료량 약 0.9 μg 정도의 사용으로 상대표준 편차 백분율, 0.045%를 얻었으며, 플루토늄 모액에 대하여 얻어진 측정값의 비는 1.0021로 희석으로 오는 오차가 그리 크지 않음을 알 수 있었다. 조절전위 전기량법은 사용한 시료량에 따라 측정값과 표준편차가 다르게 얻어졌다. 이의 결과는 플루토늄 모액에 대하여 얻어진 측정값의 비는 0.9923~0.9960이었으며, 상대표준편차는 0.01~0.13% 범위를 보였다. 따라서 고 방사능 물질중의 플루토늄 정량은 발생하는 폐기물이나 안전성 및 편의성 등을 고려할 때 동위원소희석 질량분석법을 사용하는 것이 유리한 방법이다. 연구용 원자로인 하나로에서 조사된 핵연료봉 하나를 선택하여 상. 중 및 하로 나누어 시료를 취하여 플루토늄을 동위원소희석 질량분석법으로 정량한 결과 각각 1.155 mg/g(fuel+clad), 2.483 mg/g(fuel+clad) 및 1.920 mg/g(fuel+clad)을 보였다. 이 결과로 볼 때 중간부분이 연소가 제일 많이 되고 차례로 하단, 상단부분의 순으로 연소가 많이 되었음을 알 수 있다. 이때 질량분석에 사용된 플루토늄량은 동위원소희석 질량분석법 결과로부터 계산을 하여본 결과 하나의 시료당 약 40 ng 정도가 사용되었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.

참고 문헌

- Bartlett, T. W., *Anal. Chem.* **23**, 705 (1951).
- Liebhafsky, H. A., E. H. Winslow, and H. G. Pfeifer: *Anal. Chem.* **34**, 282R (1962).
- V. Baeckmann A., and P. Pella, *Anal. Chem.* **247**, 278 (1969).
- Milner, G. W. C., and Phillips G., Proc. Symp. on Nuclear Materials Management, IAEA, Wien (1965).
- Savage, D. J., and J. L. Drummond: *Proc. Symp. on Anal. Methods in Nuclear Fuel Cycle IAEA, Vienna* (1972).
- S. K. Aggarwal, M. K. Saxena, H. C. Jain, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **136**, 111 (1992).
- H. Sorantin, "Determination of Uranium and Plutonium in Nuclear Fuels", Verlag Chemie, Weinheim (1975).
- V. Kuvik and L. Vrbora, IAEA-AL-031, (1990).
- K. Ronesch, G. Tammet, J. Berger, N. Doubek, G. Bagliano, S. Deron, IAEA-AL-059, (1992).
- M. K. Holland, J. R. Weiss and C. E. Pietri, NBL-299, (1981).
- W.D. Shults, *Talanta*, **10**, 833 (1963).
- D. D. Jackson, R. M. Holland, F. R. Roensch, T. E. Rein, *Anal. Chim. Acta*, **117**, 205 (1980).
- J. E. Harrar, *Electroanalytical Chemistry*, Vol. 8, A. J. Bard, Ed., Marcel Dekker, Inc., New York, (1975).
- J. M. Cleveland, "The Chemistry of Plutonium", *Am. Nucl. Soc.*, 49-52 (1979).
- G. H. Coleman, The Radiochemistry of Plutonium; Report NAS-NS 3058 (1965).
- H. Klinkenberg, W. Van Borm, F. Souren, *Spectrochim. Acta*, B **51**, 139 (1996).
- J. S. Kim et al., Proceedings of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting Seoul, Korea, Oct. (1999).
- K. S. Choi et al., *Anal. Sci. Tech.*, **13**(5), 584 (2000).
- J. Oesselmann, Finnigan MAT GmbH, Plutonium Measurements Using the Resin Bead Method, Tech. Rep. No. 57 (1985).
- S. C. Sohn, M. Y. Suh, J. S. Kim, B. C. Song, K. W. Jee, W. H. Kim, *J. of Korea Chem. Soc.*, V.44, No. 6 (2000).