

알파분광분석법에 의한 금속전환체 모의용액중

²⁴¹Am, ²⁴⁴Cm 및 ²³⁷Np의 정량

양한범, 조기수, 이일희, 박영재, 지광용, 김원호
 한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지
 nhbyang@kaeri.re.kr

원자력발전에서 발생하는 사용후핵연료의 효율적인 관리와 평화적인 이용을 위한 핵비확산성 건식처리기술을 개발 측면에서 새로운 기술적 접근방법으로 리튬용융염을 이용한 산화물 사용후핵연료의 금속전환에 대한 연구가 수행되고 있다. 사용후핵연료의 금속전환과정에서 발생하는 금속전환체에 존재하는 ²⁴¹Am, ²³⁷Np과 ²⁴⁴Cm의 함량을 정량할 수 있는 방법이 요구되고 있다. 일반적으로 악틴족 원소의 정량은 용매추출법, 이온 크로마토그래피, 또는 이온교환방법으로 균 또는 개별분리한 후 해당원소를 planchet에 전기전착하여 α-분광분석법(α-spectrometry)으로 정량하는 방법이 널리 알려져 있다. 본 연구에서는 금속전환체 모의용액을 대상으로 ²⁴¹Am, ²³⁷Np과 ²⁴⁴Cm를 1차로 음이온교환수지 칼럼으로 Np-237을 분리하고, 2차로 2-(di-ethylhexyl) phosphoric acid(HDEHP) 칼럼을 사용하여 추출크로마토그래피로 Am과 Cm을 선택적으로 분리한 후 α-분광분석법(α-spectrometry)으로 정량하였다.

분리방법 : 금속전환체 모의용액에 함유되어 있는 ²⁴¹Am, ²³⁷Np과 ²⁴⁴Cm를 8M HNO₃ 용액에서 IR 램프로 건조시킨 다음 1M NH₂OH.HCl-0.1M HCl용액 1mL씩 가하고 2시간 후 다시 IR 램프로 건조과정을 2회 반복한 다음 12M HCl 1mL을 가하여 용해시켰다. 다음 plastic funnel 및 one-way plastic stopcock 가 부착된 음이온교환수지 분리관[Bio-rad AG 1x4, 100-200 mesh chloride form, 60mm(H), 4.7mm(I.D.)]에 Np(IV)을 흡착시키고 4M HCl 용액으로 Np를 용리하여 α-분광분석법(α-spectrometry)으로 정량하였다.

Distribution coefficients of actinides on anion exchange resins in HCl								
Metal	Molarity of HCl							
	1	2	4	6	8	10	12	
Am(III)	←		No adsorption				→	
Cm(III)	←		No adsorption				→	
U (IV)	<1	<1	<1	1	50	>100	>100	
U (VI)	-2	~10	~180	800	1000	1000	800	
Np(III)	←		No adsorption				→	
Np(IV)	<1	<1	<1	20	700	>1000	>1000	
Np(V)	<1	<1	2	200	800	>1000	>1000	
Np(VI)			Strongly adsorbed from HCl > 6M					
Pu(III)	←		No adsorption				→	
Pu(IV)	<1	<1	<1	1	50	>100	>100	
Pu(VI)			Strongly adsorbed from HCl > 6M					

Table 1 Distribution coefficients of actinides on anion exchange resins in HCl solution

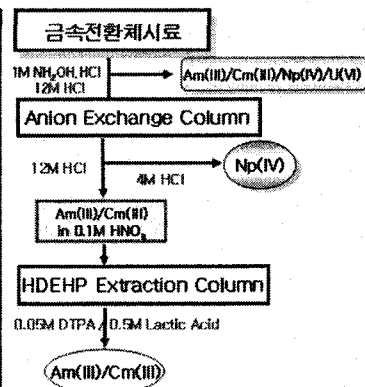


Fig. 1 Flow sheet of separation Np, Am, and Cm

^{241}Am 및 ^{244}Cm 는 2-(di-ethylhexyl)phosphoric acid(HDEHP) 추출 분리관에 흡착시킨 후 0.05M DTPA/0.5M Lactic acid(pH=3.0)로 선택적으로 분리하여 전착한 후 α -분광분석법(α -spectrometry)으로 정량하였다. 이때 각 핵종의 α -에너지(^{241}Am : 5.48 MeV, ^{244}Cm : 5.81 MeV, ^{237}Np : 4.79 MeV)를 측정하여 확인 한 후 다시 전알파 방사능(Gross-alpha counting)을 측정하여 각 핵종을 정량하였다.

전기전착 및 α -분광분석법 : 분석시료를 비커(비유기물 시료는 10mL, 유기물 시료는 30mL)에 취하여 IR 램프로 증발 건조시킨다. 이때 시료중에 유기물질인 DTPA/Lactic Acid가 함유되어 있는 경우에는 30mL 비커를 사용하여 NaHSO_4 , H_2SO_4 를 사용하여 1차로 유기물을 파괴시킨 다음 HNO_3 와 HClO_4 를 사용하여 2차로 유기물을 파괴시킨다. 이때 시료가 투명하지 않은 경우에는 NaHSO_4 와 H_2SO_4 를 사용하여 3차로 유기물을 파괴시킨 후 시료를 hot plate를 사용하여 가열하여 SO_3 증기를 제거한다. 그리고 전착액(0.1M NaHSO_4 /0.53M Na_2SO_4 , pH= 1.8-2.0) 0.5mL을 넣고 다시 IR 램프로 증발 건조시킨다. 비커가 완전히 식은 후 증류수 0.5mL과 전착액 4.5mL을 넣고 전착셀로 옮기며, 추가로 전착액 5mL를 사용하여 비커를 세척하여 전착셀로 옮긴다. 1200mA로 60분간 전착한 후 25% 암모니아수 1mL을 넣고 1분간 추가로 전착한 후 전착을 종료하고 증류수를 사용하여 전착셀을 증류수로 세척한 다음 전착셀내 planchet을 분리한다. 분리한 planchet을 가열하여 건조시킨 다음 α -분광분석법(α -spectrometry)으로 분석한다.

Fig. 2에 금속전환체 모의용액 시료중 ^{237}Np 과 ^{241}Am 및 ^{244}Cm 의 α -스펙트럼을 나타내었다. ^{241}Am 및 ^{244}Cm 를 동시에 전기전착한 경우는 α -spectrometry로 각 에너지에 해당하는 피크의 면적으로부터 두 핵종의 방사능 비율을 구하고 다시 Gross-alpha counting을 한 다음 두 측정치로부터 개별 핵종의 방사능을 구하였다.

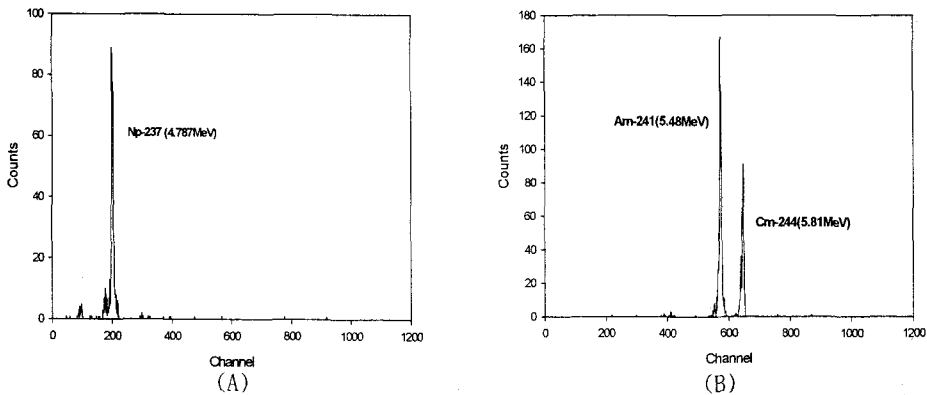


Fig. 2. Alpha Spectrum of (A) ^{237}Np and (B) ^{241}Am and ^{244}Cm in the sample after electrodeposition