

동위원소 회석질량분석법에 의한 플루토늄 정량에서 시료와 스파이크 혼합비에 따른 선형성 및 측정한계 검토

전영신, 김태현*, 조기수, 한선호, 지광용, 박용준

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150

* 주식회사 액트, 대전광역시 대덕구 신일동 1688-5

vsieon@kaeri.re.kr

열 이온화 질량분석기를 이용한 동위원소회석 질량분석법(IDMS)으로 미량 플루토늄을 정량하는데 있어서 시료와 스파이크를 섞는 비율에 따라 얻어지는 정량 값의 선형성을 알아보았다. 또한 얻어진 결과에 대한 정확도, 정밀도 그리고 결과에 대한 불확도를 산출하기위해 고려되어야 할 인자들을 살펴보았다. 스파이크로 Pu-242(IRMM-044)를 사용하였으며 본 실험에 사용한 플루토늄 스파이크 량은 3.2 ng이었다. 정량분석 검정에 사용된 시료는 실험실 자체검정 플루토늄 표준물을 사용하였으며, 0.034 ng, 0.171 ng, 0.34 ng, 1.71 ng, 및 3.42 ng을 각각 시료로 사용하였다. 본 실험결과 회석배수에 상관없이 넣어준 량을 100으로 했을 때 정량된 플루토늄의량은 평균 103.55 ± 4.9 값을 얻었다. 또한 얻어진 correlation coefficient는 0.99956으로 좋은 직선성을 보였으며 regression coefficient는 1.0175를 보였다.

Table 1. Results of determination for plutonium by TIMS-IDMS

Blending (sample + spike)	239/242	Input, Pu(ng)	Measured, Pu(ng)	Meas./Input 100(%)
1 + 300	0.009377	0.035	0.038±0.0023	108.57
5 + 300	0.041336	0.175	0.182±0.0029	104
10 + 300	0.075771	0.35	0.337±0.0014	96.3
50 + 300	0.365678	1.75	1.69±0.007	96.6
100 + 300	0.729422	3.42	3.50±0.011	102.3

Table 1과 Fig. 1에 이들 결과를 나타내었으며, 이들 결과로부터 스파이크와 시료를 섞는 과정에서 오는 오차가 극미량 시료임에도 불구하고 10 % 범위 내에 있음을 보였고, 또한 스파이크와 시료를 섞는 비(ratio)에 따라 결과에 미치는 영향이 그다지 크지 않음을 보였다. 시료를 넣지 않고 시료처리와 똑같은 과정을 거친 바탕시료에 스파이크로 IRMM-044, Pu 1 ng을 넣어 239/242를 측정 한 결과 스파이크 값과의 미세한 차이를 보이기는 하였으나 시료처리 등의 전 과정에서 별 다른 오염(cross-contamination)이 없음을 확인하였다. 본 실험에 사용한 시료의 동위원소 비 측정에서 239/242의 비는 10.5074 값을 얻었고, 0.034 ng 시료에 스파이크 3.2 ng을 넣어 측정 한 239/242의 비가 0.009377 이었다. 측정비로 계산되는 동위원소회석질량분석법을 이용한 플루토늄의 정량한계는 측정에 사용한 질량분석기의 Abundance sensitivity(2×10^{-6})을 감안한 값이 될 수 있으나 바탕 값 측정으로부터 얻어진 1 pg 정도를 측정한계로 볼 수 있음을 본 실험을 통하여 알 수 있었다. 핵 물질 실험에 사용한 고무장갑 등의 보호구 중 극미량의 플루토늄을 정량하는데 따른 고려해 주어야 할 불확도 요소들을 Fig. 2에 보였으며 불확도에 영향을 미치는 요소 중 Pu-239/Pu-242 측정에서 오는 불확도가 제일 크게 나타났으며 전체 불확도의 60 % 정도를 차지하는 것으로 나타났다.

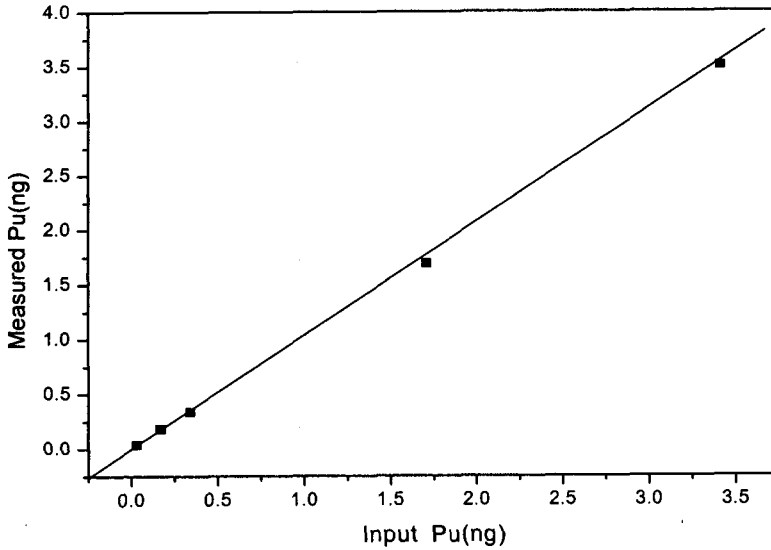


Fig. 1. Linearity in determination of plutonium according to blending ratio between sample and spike.

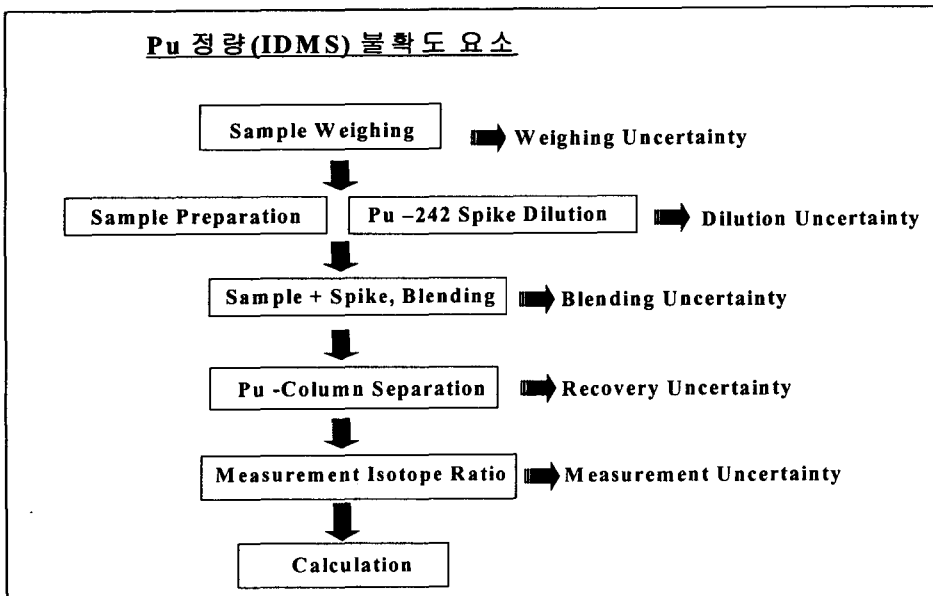


Fig. 2. Sources of uncertainty components for the determination of Pu in radwastes by IDMS