

^{243}Am 을 추적자로 사용한 사용후 핵연료 시료 중 ^{237}Np 과 ^{241}Am 의 동시정량

조기수, 송병철, 김영복, 전영신, 박영재, 김원호
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지
ksioe@kaeri.re.kr

사용후 핵연료 중의 U, Pu, Np, Am 및 Cm 등의 악티늄족 원소의 함량을 정량하는 것은 핵연료의 연소도 측정 및 연소이득(burnup credit)을 평가하는데 매우 중요하다. 본 연구에서는 사용후 핵연료 중 ^{237}Np 과 ^{241}Am 을 정량하기 위해 ^{239}Np 과 ^{243}Am 을 각각 추적자로 사용하는 방법을 검토하였다. ^{239}Np 은 반감기가 매우 짧아(2.35d) 표준물확보 및 현장적용이 매우 제한적이다. 그러나 ^{243}Am 은 반감기가 매우 길고(8000y) 또한 알파붕괴 시 ^{239}Np 을 생성하며, 일정시간이 지나면 두 핵종이 방사평형(secular equilibrium)에 도달하게 된다. 따라서, ^{243}Am 표준물을 이용하여 이에 함유된 ^{243}Am 과 ^{239}Np 을 각각 해당 핵종의 추적자로 활용하고자 하였으며, 이를 통하여 사용후 핵연료 시료 중 ^{237}Np 과 ^{241}Am 을 동시에 정량하는 방법을 검토하였다. ^{243}Am 은 알파분광법으로, ^{239}Np 은 감마분광법으로 각각 측정하는 방법을 검토하였다. 낮은 에너지(99.5 ~ 278 KeV)의 감마선을 방출하는 ^{239}Np 피크들에 대해 최적 측정조건을 찾고자 하였다(그림 1). ^{243}Am 표준용액의 농도변화에 따라 ^{243}Am 과 ^{239}Np 을 각각 측정하여 상관계수(correlation factor)를 구하였다. 10 Bq 이하의 낮은 농도에서는 ^{239}Np 의 측정값이 부정확하였으며, 10 Bq ~ 20 Bq 에서는 $^{239}\text{Np}/^{243}\text{Am}$ 비의 값이 1.072 ± 0.024 로 거의 일정하게 나타났다(그림 2). 따라서, 이 값을 추적자로 사용되는 ^{239}Np 의 회수를 측정 시 보정계수로 사용하고자 하였다. 사용후 핵연료 시료중 이들 초우란 원소를 분리하는 방법으로 음이온교환수지 및 HDEHP 추출크로마토그래피를 검토하였다. 10M HCl 매질에서 Np은 음이온교환수지에 흡착되고 Am은 용출된다. 흡착된 Np은 4M HCl 용리액으로 Pu로부터 분리하였으며(그림3), 용출된 Am은 0.05 M DTPA-0.5 M LA 용리액으로 HDEHP 추출크로마토그래피에서 분리하였다(그림 4). 우라늄 매질에서 ^{238}Pu , ^{237}Np , ^{241}Am 및 ^{244}Cm 을 함유하는 합성용액으로부터 ^{237}Np 과 ^{241}Am 을 각각 분리하여 정량한 후 회수율을 구하였다. 이때 분리된 ^{241}Am 과 ^{237}Np 은 황산염 매질에서 전착한 다음 알파분광법으로 각각 정량하였다. 향후 본 방법을 사용후 핵연료 시료에 적용하여 ^{237}Np 및 ^{241}Am 을 정량하고자 하며, 아울러 Pu 및 Cm 핵종에도 적용하고자 한다.

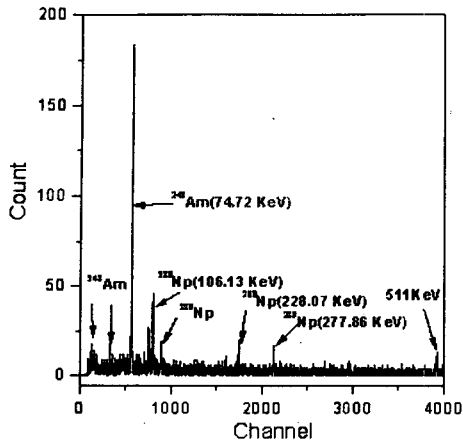


그림 1 Gamma Spectrum of ^{243}Am and ^{239}Np secularly equilibrated in ^{243}Am standard solution. counting time; RT=2000sec, ^{243}Am =5.979 Bq(0.2 mL)

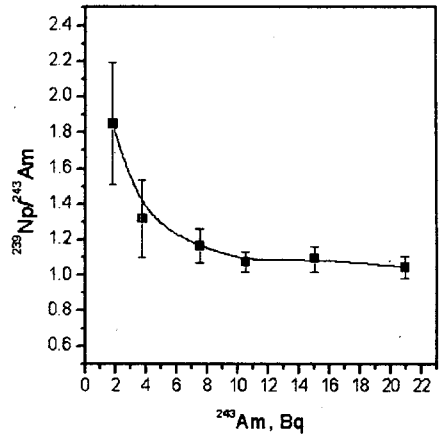


그림 2. Correlation between ^{239}Np and ^{243}Am as a function of ^{243}Am amount. ^{243}Am ; gross alpha counting, ^{239}Np ; gamma spectrometry, sample; dried onto a planchet, correction factor: $1.072 \pm 0.024(1S)$ at 10 ~ 20 Bq

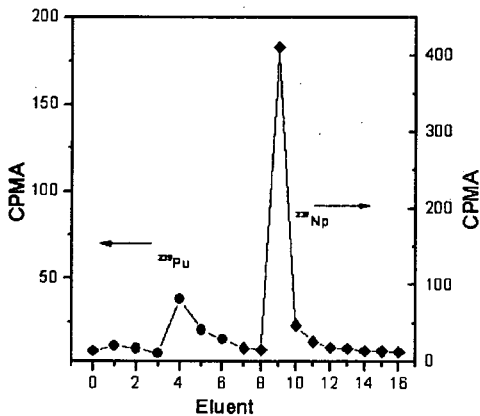


그림 3. Elution behavior of Pu and Np onto Anion exchange column. column size; AG1-x8, 100-200 mesh(70mmH x7mmφ, Sample; ^{239}Pu 4.2 Bq/ ^{237}Np 8.34Bq, loading(no 0); 10M HCl, eluent (1~7); 10M HCl-0.1M HI, eluent(7~16); 4M HCl, 2 mL each fraction, detection; LSC

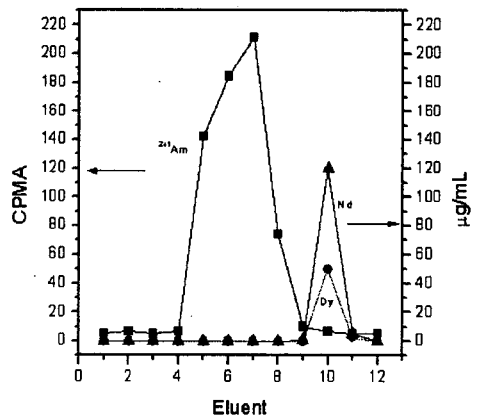


그림 4. Elution behavior of Am and REE onto HDEHP extraction column. column size; 40mmHx4mmφ, loading(no 1); 0.1M HNO₃ 2 mL, washing(2,3); 0.1M HNO₃ 2 mL each, eluent(4~9); 0.05 MDTPA-0.5MLA 1 mL each, cleaning (10~12); 6M HNO₃ 2mL each fraction, detection; LSC(^{241}Am) and ICP-AES(REE)