

Pu 동위원소 표준물 중 핵분열생성물의 분리 및 동위원소 비 측정

전영신, 김정석, 하영경, 송규석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989-111

ysieon@kaeri.re.kr

1. 서론

일반원소에 대한 동위원소 비 측정은 일반적으로 자연 동위원소 비를 기준으로 동위원소 비를 측정할 수도 있지만 인공원소인 경우는 동위원소 표준물을 측정기준으로 삼는다. 플루토늄의 경우 동위원소 중 대표적으로 Pu-241이 자발적 β 붕괴를 하여 Am-241로 변하게 된다. 따라서 시간이 경과함에 따라 동위원소 비가 변하기 때문에 정확한 동위원소 표준물로 사용하기 위해서는 시간이 지남에 따라 방사성붕괴로 생성된 불순물을 표준물로부터 분리하여야 한다. 따라서 순수 플루토늄을 분리하는 실험과 분리된 플루토늄 시료에 대한 동위원소 비는 물론 이의 정확한 정량을 위하여 플루토늄(Pu-242) spike를 사용하여 IDMS 방법으로 정량하였으며 동위원소 비 변화를 분리 전, 후 그리고 붕괴상수를 고려한 계산 값과 상호 비교하였다.

2. 본론

2.1 Pu 분리실험

플루토늄 동위원소 표준물은 NBL(New Brunswick Laboratory) CRM(Certified Reference Material) No.122, PuO₂를 사용하였다. 이 용액으로부터 약 80 ug-Pu 이 되도록 취하여 끝이 뾰족하여 건조 후 용액이 쉽게 모이도록 만든 작은 비커에 넣어 1M-HIF 5방울을 넣어 건조하였다. 다시 12 M HClO₄ 15방울을 가하고 건조 후 0.5 mL 12 M HCl을 넣어 용해시켰다. 이온교환수지를 넣은 분리관, AG 1 x 8, 100~200 mesh, O.D. 5mm, height 5.5 cm에 12 M HCl로 충분히 평형이 되도록 씻어준 칼람에 앞서 준비된 표준 플루토늄용액을 흡착시켰다. 12 M HCl 6 mL를 흘려 불순물이 빠지도록 하였다. 플루토늄이 흡착된 칼람에 실험 직전에 만든 12 M HCl-0.1M HI 용액 3 mL를 흘려 플루토늄을 용리하여 건조시키고 6 M HNO₃ 과 IIF 3~5방울을 적가하여 폴리에틸렌 병에 보관하였다.

2.2 동위원소희석 질량분석법에 의한 Pu정량

순수하게 분리한 용액과 IRMM-044, Pu-242 spike 희석용액을 각각 정확히 달아 섞은 후 질량분석을 수행하였다. 질량분석결과를 이용한 계산식은 다음과 같으며 이때 얻어진 Pu의 농도는 1.139 ug-Pu/g-solution 이었다.

$$C_x = C_y \cdot \frac{M_x}{M_y} \cdot \frac{W_y}{W_x} \cdot \frac{R_y - R_b}{R_b - R_x} \cdot \frac{\sum_x Ri}{\sum_y Ri} \quad (1)$$

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

2.3 질량분석

사용한 기기는 Finnigan MAT 262, 열 이온화 질량분석기를 사용하였으며, 검출기로 다중 Faraday Cup을 사용하여 플루토늄이 갖는 5개 동위원소(Pu-238, 239, 240, 241, 242)를 동시에 측정하는 방법을 이용하였다. 필라멘트는 레늄 이중필라멘트(Rhenium double filament)를 사용하였다. 필라멘트는 사용 전에 별도의 진공가열장치를 이용하여 필라멘트에 불순물로 들어있을 수 있는 우라늄 등을 제거하여 Pu-238에 동위원소의 영향을 받지 않도록 하였다.

2.4 불순물 분리 전 후 비교

NBL(New Brunswick Laboratory) CRM(Certified Reference Material) No.122, PuO₂ 표준물은 1985년 1월을 기준으로 검증한 자료를 보였으며 이의 결과를 아래 table 1.에 보였다.

Table 1. Plutonium Assay and Isotopic Standard.(As of Jan. 1, 1985.)

Isotopes	Atom %
Pu-238	0.0521±0.0011
Pu-239	87.305±0.004
Pu-240	11.539±0.004
Pu-241	0.9248±0.0011
Pu-242	0.1790±0.0013
Atomic weight	239.191

또한 플루토늄 표준물로부터 방사성 붕괴상수를 고려한 각각의 동위원소 계산값(이론값)과 분리 전 후 질량분석 결과를 table 2.에 보였다.

Table 2. Plutonium Assay and Isotopic Standard.(As of Aug. 20, 2011)

Isotopes	Atom %		
	Calc. V.	Before Sep.	After Sep.
Pu-238	0.043	0.0419	0.045
Pu-239	87.968	87.5838	87.912
Pu-240	11.554	11.5386	11.600
Pu-241	0.256	0.6562	0.264
Pu-242	0.178	0.1795	0.178

Table 3.에 플루토늄 각동위원소별 반감기를 나타내었으며 반감기에 따라 동위원소 비 변화가 크을 알 수 있었다.

Table 3. Isotope of Pu half-life.

Isotopes	half-life
Pu-238	86.4
Pu-239	2.44×10^4
Pu-240	6.6×10^3
Pu-241	14.1
Pu-242	3.87×10^5

3. 결론

동위원소 표준물을 분리하기 전과 후의 동위원소 비를 비교할 때 반감기가 짧은 Pu-241의 변화가 제일 컸으며 이론적 계산값과 측정값이 오차범위 내 잘 일치함을 볼 수 있었다.

4. 참고문헌

[1] E. K. hyde, Proc. of the 1st Int. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva(1954), 7,281, (1955).

[2] F. Nelson, D. C. Michelson, and J. H. Holloway, J. Chromatogr. 14, 258(1964).

[3] C. Keller, Radiochim. Acta , 147(1963).

[4] G. L. BoomanCh. F. Metz, J. E. Rein and G. R. Waterbury in I. M. Kolthoff, P. J. Elving, E. B. Sandell(eds.): "Treatise on Analytical Chemistry". Part II, Vol. 9(Uranium, The Transuranium(actinide) Elements). Interscience Publishers, New York(1962).