

사용후핵연료의 용해 용액 중 플루토늄 정량 및 불확도 평가

박양순, 전영신, 김정석, 박용준, 송규석

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

nyspark@kaeri.re.kr

1. 서론

사용후핵연료 용해 용액과 같은 고방사성 시료 내에 함유되어 있는 플루토늄을 정량하기 위해서는 극미량의 시료를 취해 정확히 분석할 수 있는 열이온화질량분석기(TIMS, Thermal Ionization Mass Spectrometer)를 이용한 동위원소 희석 질량분석법(IDMS, Isotope Dilution Mass Spectrometry)이 효과적이다. 플루토늄 동위원소 희석 질량분석법은 정확하게 무게 잰 시료에 스파이크로 Pu-242을 무게 재서 섞은 후, 스파이크를 넣은 시료와 넣지 않은 시료의 각각에 대하여 동위원소 비를 측정하고, 동위원소 평형식에 대입하여 플루토늄을 정량분석하는 방법이다.

본 연구에서는 열이온화질량분석기를 이용한 동위원소 희석 질량분석법을 활용하여 사용후핵연료 용해 용액 중의 플루토늄을 정량하였고 이때의 불확도를 평가하였다. 실험 단계 별로 시료의 무게 측정 불확도, 스파이크의 희석 불확도, 시료와 스파이크를 혼합할 때의 불확도, 플루토늄 농도측정 불확도, 흡착 컬럼에 의한 회수 불확도를 고려하여 최종적으로 확장표준불확도를 산출하였다.

2. 본론

2.1 실험

Pu 동위원소 측정에 사용된 장비는 열이온화 질량분석기(TIMS, 모델: Finnigan MAT262) 이었고, 동위원소 희석용액으로 사용된 스파이크 표준용액은 IRMM-044 Pu-242 이었다. Pu 농도의 측정불확도 산출을 위한 표준용액으로 IRMM-290 Al, Pu 239/242: 1.025140 ± 0.000083을 사용하였다.

2.2 사용후핵연료 용해 용액 중 Pu 정량 및 불확도 산출

사용후핵연료 용해 용액 내에 함유되어있는 플루토늄 양은 식 (1)로부터 계산이 가능하다[1].

$$C_x = C_y \times \frac{W_y}{W_x} \times \frac{R_y - R_b}{R_b - R_x} \times \frac{\sum_x Ri}{\sum_y Ri} \dots\dots (1)$$

C_x : 시료 중 플루토늄 농도

C_y : 스파이크 용액 중 플루토늄 농도

M_x : 시료 중 플루토늄 평균원자량

M_y : 스파이크 용액 중 플루토늄 평균원자량

W_x : 취한 시료 무게

W_y : 취한 스파이크 용액 무게

R_x : 시료 중 Pu-242/Pu-239

R_y : 스파이크 용액 중 Pu-242/Pu-239

R_b : 섞은 시료 중 Pu-242/Pu-239

$\sum_x Ri$: 시료 중 Pu-239를 포함한 각 동위원소비의 합

$\sum_y Ri$: 스파이크 용액 중 Pu-239를 포함한 각 동위원소비의 합

여기서, 시료 중의 Pu-239와 스파이크인 Pu-242 만을 이용하여 계산하면 식 (2)로 나타낼 수 있다.

$$C_x = C_y \times \frac{W_y}{W_x} \times \frac{R_y - R_b}{R_b - R_x} \times \frac{1}{\text{Recovery rate}} \times \frac{1}{w} \dots\dots (2)$$

w : 시료무게(g)

Recovery rate : 컬럼을 사용한 분리과정에서의 회수율

시료의 0.625 g을 취하고 식 (2)에 의해 플루토늄 양(C_x)을 얻은 결과, 농도가 0.0095 ng/g 이었다. 시료의 무게 측정 불확도, 스파이크의 회석 불확도(이때 고려해야할 구성 성분들의 불확도는 표 1 참조), 시료와 스파이크의 혼합 불확도, 플루토늄 농도측정 불확도, 흡착 컬럼에 의한 회수 불확도를 각각 구하여 합성 표준불확도[$u(C_x)$] 값을 얻은 결과, 0.000238 이었고, 확장 표준불확도 [$U(C_x)$]는 식 (3)과 같으므로,

$$U(C_x) = 2 \times u_c(C_x) \dots\dots\dots (3)$$

확장표준불확도는 0.000476 이었다.

Table. 1. 스파이크의 회석 불확도 산출을 위한 구성 성분들의 불확도.

| 불확도 성분 | 기호 | 값 | 표준 불확도 | 상대표준 불확도 |
|-----------|----------------|--------|--------------------|------------------------|
| 스파이크 농도 | C_{st} | 9.213 | 0.007 | 7.598×10^{-4} |
| 무게 | W | 11.633 | 2×10^{-6} | 1.72×10^{-7} |
| V-flask | V (10 mL) | 100 | 0.04 | 4×10^{-4} |
| V-flask | V (25mL) | 25 | 0.05 | 2×10^{-3} |
| eppendorf | V (mL) | 0.25 | 0.0025 | 1×10^{-2} |

3. 결론

열이온화질량분석기를 사용하고 동위원소 회석 질량분석법을 활용하여 시료 중의 플루토늄 함량을 측정하였다. 플루토늄 함량을 확장표준불확도를 적용하여 표현하면 $0.0093 \text{ ng/g} \pm 0.000476 \text{ ng/g}$ 이었다.

4. 감사의 글

본 연구는 교육과학기술부의 원자력기술개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

5. 참고문헌

[1] Y. S. Jeon, S. C. Son, J. S. Kim, Analytical Science & Technology Vol. 16, No. 3, pp. 191-197, 2003.