

Electrodeposition of ^{237}Np for Alpha Spectrometry and Application to Spent Nuclear Fuel Samples

알파분광분석법에 의한 ^{237}Np 정량 및 사용후핵연료 시료에의 적용

Kihsoo Joe, Jung-Suck Kim, Sun-Ho Han, Yeong-Jai Park and Won-Ho Kim
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 DuckJin-Dong, Yuseong-Ku, Daejeon

ksjoe@kaeri.re.kr

조기수, 김정석, 한선호, 박영재, 김원호
한국원자력연구소, 대전시 유성구 덕진동 150번지

(Received September 14, 2005 / Approved February 3, 2006)

Abstract

Alpha spectrometry was studied for the determination of ^{237}Np in spent nuclear fuel samples. The optimum condition for the electrodeposition of ^{237}Np was obtained as follows : for 1 ~ 1.5 hour of deposition time, at the current intensity of 1.2 ~ 1.5 A and at sodium sulfate electrolyte without organic additive. The deposition yield and its reproducibility on ^{237}Np was decreased as the amount of ^{237}Np decreased from 4.16 Bq down to 0.0264 Bq(1ng). The recovery yield of ^{237}Np determined by alpha spectrometry after separation in synthetic solution was $98.8 \pm 5.1\%$ (n=4). The contents of ^{237}Np in spent nuclear fuel samples were determined and the result showed an agreement within 10% of a difference between the measurement and the calculation.

Keywords : ^{237}Np , alpha spectrometry, electrodeposition, anion exchange chromatography, actinides separation

요 약

알파분광법에 의한 ^{237}Np 의 정량방법을 검토하였다. 황산염 매질에서 전류세기, 전착시간 및 유기물 첨가제 등의 변화에 따른 ^{237}Np 의 전착조건을 찾은 결과 1.2 ~ 1.5 A에서 유기첨가제 없이 1 ~ 1.5 시간 동안 전착하는 것이 효율적이었다. ^{237}Np 을 4.16 Bq에서 0.0264 Bq(1ng)까지 전착한 결과 농도가 낮을수록 전착율 및 재현성이 낮아졌으며 1 ng까지 측정이 가능하였다. 사용후 핵연료 합성용액에서 ^{237}Np 을 분리한 후 알파분광법으로 측정하여 정량한 결과 $98.8 \pm 5.1\%$ (n=4)의 회수율을 나타내었다. 사용후 핵연료 시료용액 중 ^{237}Np 을 정량하였으며 계산 값과

비교한 결과 10 % 이내에서 서로 일치하였다.

중심단어 : ^{237}Np , 알파분광분석, 전착, 음이온교환 크로마토그래피, 악티나이드 분리

I. 서론

핵연료의 연소과정에서 생성된 Np, Pu, Am, Cm 등의 초우란원소들은 핵연료의 성능평가 및 연소거동을 이해하는데 중요한 항목이 되고 있다. 특히 이들 원소 중 Np, Am 및 Cm 은 핵연료 조사 시 생성량이 비교적 적고[1] 분리거동(Am/Cm)이 희토류원소와 유사하므로 이들 원소를 정확하게 정량하기 위한 분리 및 측정방법이 요구된다. 이들 원소들은 U 및 Pu과 함께 사용후 핵연료의 선원항 자료로써 연소도에 따른 핵종의 생성 및 감손을 예측하는 code 검증에 이용되고, 나아가 burnup credit를 평가하는데 기초자료로도 활용되고 있다. 또한 ^{237}Np 은 긴 반감기(2.14×10^6 y)를 가지는 핵종이므로 방사성폐기물을 처분한 후 처분장의 안정성을 평가하는 감시핵종으로도 이용되고 있다.

일반적으로 악티늄족 원소의 정량은 용매추출이나 이온교환법으로 개별분리 또는 군 분리를 거친[2,3] 후 알파분광분석법(alpha-spectrometry)으로 정량하거나[4] 또는 질량분석법으로 동위원소를 정량하고 있다[5]. 염산 매질에서 사용후 핵연료 용액시료를 음이온교환수지에 주입하면 U, Pu 및 Np 은 수지에 흡착되고 Am과 Cm은 희토류원소와 함께 용출된다[6]. 흡착된 Np은 묽은 염산으로 용리하고, 일차 용리된 Am과 Cm은 추출크로마토그래피 등으로 이차 분리하는 방법이 알려져 있다[7]. 또는 8 M 질산매질의 시료를 음이온교환 수지에 흡착하면 우라늄 및 핵분열 생성물은 용출되고 Pu 과 Np은 흡착된다. 여기에 요드를 포함하는 염산매질의 용리액과 묽은 염산 용리액으로 Pu 과 Np을 각각 용리한다[8, 9]. 분리된 이들 원소는 전착과정을 거친 후 알파분광법으로 ^{237}Np , ^{241}Am 및 ^{244}Cm 등의 핵종을 정량한다[10].

본 연구에서는 질산 매질에서 음이온교환 수지를 사용하는 방법으로 Np을 분리하였으며, 황산염 전

해질($\text{NaHSO}_4\text{-Na}_2\text{SO}_4$)[4]에서 ^{237}Np 의 전착방법을 검토하였다. ^{237}Np 의 농도, 전착시간, 전류세기 및 전해질 첨가제 등의 조건을 변화시키면서 전착율을 측정하였으며, 알파분광법으로 ^{237}Np 을 정량할 때 피크의 분해능, 재현성 및 검출한계 등을 검토하였다. ^{237}Np 의 전착조건 및 알파분광법을 검토한 후 이를 사용후 핵연료 시료에 적용하여 ^{237}Np 을 정량하고자 하였다.

II. 실험

가. 기기 및 시약

알파에너지 측정에 사용된 Alpha-Spectrometer는 EG&G/ORTEC 사의 제품이며 300mm² silicon surface barrier detector 가 부착되어 있다. 전-알파 방사능 측정은 Gas Proportional α/β Counting System(LB 5100, Tennelec Co)을 사용하였다. 전착장치는 그림 1과 같이 polyethylene 전착셀[2 cm(id) × 8 cm(h)]과 SS 재질의 전착 planchet[1 inch(id) × 0.5mm(th)]을 금속재질의 받침대에 부착한 후 Pt 전극을 cell 속에 넣어서 구성하였다. 일정한 전류를 공급하는 constant power supplier(max. 12V, 3A)는 주문 제작하여 사용하였다. 0.1M NaHSO_4 -0.53M Na_2SO_4 의 전착매질을 제조하기 위해서 사용한 NaHSO_4 는 Junsei Co의 extra pure 급 이었고 Na_2SO_4 는 Merck GR 급 이었다. 전착율에 대한 유기착화제의 영향을 검토하기 위해서 extra pure 급의 thiourea(Junsei Chem. Co)를 사용하였다. 표준용액으로 사용한 ^{237}Np 과 ^{242}Pu 는 Damri CEA(France) 및 NBL CRM(USA) 제품이었다. 표준 알파선원(Amersham Co, UK)은 ^{241}Am , ^{244}Cm 및 ^{239}Pu 이 거의 같은 비율로 혼합된 것을 사용하였으며, 이 표준선원을 사용하여 에너지 교정 및 계측효율을 측정하였다. Np 분리에 사용한 음이온교환수(AGMP-1, 200-400

mesh size)는 Bio-Rad Laboratories(USA) 제품이였다.

나. ²³⁷Np 의 전착을 측정 및 알파분광분석

0.1M NaHSO₄-0.53M Na₂SO₄(pH 1.85) 매질의 전착용액을 제조하고 ²³⁷Np 일정량(0.0264 ~ 4.16 Bq)을 취하여 전류세기, 전착시간, 유기물 첨가제 및 냉각조건 등의 변수에 따라 전착율을 측정하였다. 즉, 전류세기를 300 ~ 1800 mA, 전착시간을 30 ~ 120 분으로 하였으며, 유기물첨가제로 thiourea 를 선택하여 농도변화(0.001M ~ 0.01M)에 따른 전착율의 변화를 검토하였다. 전착된 planchet 을 열판위에서 고온으로 가열하여 이물질 제거한 후 5000 ~ 20000 초 동안 알파에너지를 계측하여 ²³⁷Np 을 정량하였다. 또한 ²³⁷Np 농도 변화에 따라 전착율, 피크의 분해능 및 검출한계 등을 구하였다.

다. 합성용액 및 사용후 핵연료 시료용액 제조

핵연료의 합성용액은 연소도가 35 GWD/MTU 되는 PWR 사용후 핵연료를 대상으로 하여 성분원소 및 농도를 계산하고(Origen-2 Code) 이들 원소를 3M 질산매질에서 원용액을 제조하고 다시 일정비율 희석하여 기준용액(reference solution)으로 사용하였다(표 1). 사용후 핵연료 시료용액은 연소도가 약 40 ~ 60 GWD/MTU 되는 3 종류의 핵연료를 각각 0.2 ~ 0.7g 씩 취한 후 방사능이 차폐된 핫셀 내에서 2-3일 동안 용해하였다. 8M 질산매질에서 원용액을 제조하고 다시 일정비율 희석하여 glove box 로 옮긴 후 ²³⁷Np 정량 시료로 사용하였다.

Ⅲ. 결과 및 고찰

가. ²³⁷Np 전착 및 알파분광분석

황산염 전해질(0.1M NaHSO₄-0.53M Na₂SO₄) 에서 ²³⁷Np 의 전착거동을 검토하였다. 일정시간에서 전류세기를 300 mA에서 1800 mA 까지 증가하였을 때 ²³⁷Np의 전착율을 측정된 결과 그림 2와 같이 나타났다. 그림 2에서 보는 바와 같이 전류세기가 증가함에 따라 전착율이 증가되었으며, 1.8A 에서는 전착율은

Table 1. Synthetic solution of spent nuclear fuel sample

Elements	μg / ml
Ba	0.734
Cd	0.048
Ce	1.002
Cs	1.004
Eu	0.0566
Gd	0.0548
La	0.514
Mo	1.412
Nd	1.702
Pr	0.47
Rb	0.148
Sb	0.008
Se	0.06
Sm	0.362
Sr	0.322
Te	0.206
Y	0.19
Zr	1.522
I	0.1
Am	-
Cm	-
²³⁷ Np	0.1913
²³⁹ Pu	3.3264
U	380.094

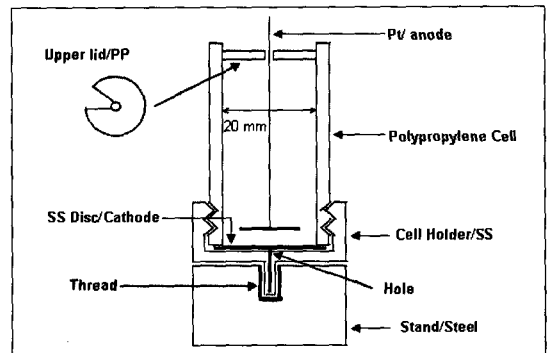


Fig. 1 Schematic Diagram of Electrodeposition Cell

증가하였지만 과전류에 의해 전착셀 안쪽이 검게 타는 현상을 보였다. 전착셀 바깥면에 공기를 불어넣어 발생하는 열을 방출시켜주므로 높은 전류세기에서도 전착율이 감소하지 않고 증가하였다. 전류세기 및 전착시간 변화에 따른 전착율을 표 2와 그림 3에 나타

내었다. 전류세기를 1A에서 1.8A 까지 변화시키고 전착시간을 30분에서 2시간 까지 변화시킨 결과 전류세기 및 전착시간이 증가할 수록 전착율이 증가하였으나 전착시간이 1.5시간 이상에서는 거의 같은 전착율 (~ 97%)을 보였다. 이와같은 현상은 다른 연구자의 결과와 유사하였으며[11], 전착셀을 냉각하지 않을 경우 1시간까지 증가하다가 그 이상에서는 전착율이 감소하였으나[10] 본 연구에서는 1.5시간까지 전착율이 증가하였다. 표 2에서 보는 바와같이 ^{237}Np 의 전착율은 전반적으로 시간이 길고 전류세기가 높을 수록 전착율이 증가하지만 시간적인 면과 편의성을 고려할 때 1200 mA 에서 60분 동안 전착하는 것이 효율적이라고 판단되었다. 그리고 그림 1에서 양극과 음극의 사이의 간격은 1cm 였으며, 전착되는 planchet 면적 및 1.2A 전류세기에서 전류밀도는 각각 314 mm^2 와 $0.38\text{A}/\text{cm}^2$ 였다[12].

Table 2. Recovery yields of ^{237}Np on electrodeposition followed by alpha spectrometry as a function of deposition time and current (unit : %)

time(min)	1000 mA	1200 mA	1500 mA
30	72.4	75.6	75.6
60	84	86.5	89.3
90	97.3	99.5	98
120	100	99.1	98.2

* Electrodeposition condition : 10 ml of 0.1M NaHSO_4 -0.53M Na_2SO_4 ,
 * ^{237}Np : 4.16 Bq

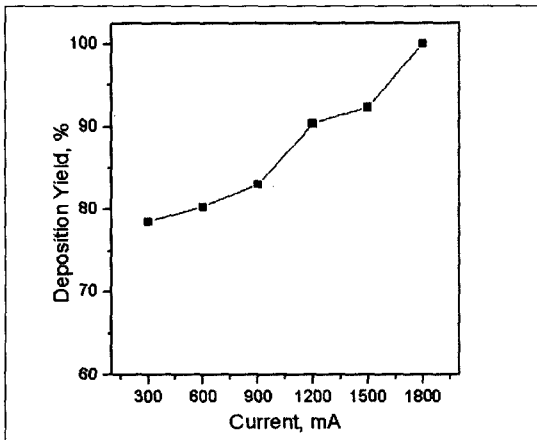


Fig 2. Electrodeposition yield of ^{237}Np as a function of current. ^{237}Np ; 4.16 Bq, deposition condition; 10 ml of NaHSO_4 -0.53M Na_2SO_4 , 1 hr of deposition time, air cooling

그림 4에는 전해질에 첨가제인 thiourea를 가하였을 경우 전착율의 변화를 나타낸 것이다. 그림 4에서 보는 바와같이 thiourea의 농도가 증가할 수록 전착율이 감소하였다. 일반적으로 pyridine, thiourea, succinate 등의 유기첨가제는 황산염 전해질에서 광택제 역할을 할 뿐 아니라, 전류효율을 증가하여 전착을 균일하게 하는 것으로 알려져 있으나[13] 악티나이드와 착물을 형성하므로 오히려 전착율이 감소하는 것으로 보고되고 있다[12]. 그림 4에서 보는 바와같이 0.001M의 thiourea 에서는 유기물이 없을 때보다 전착율이 약간 증가하였는데 이와같은 현상은 ^{241}Am 전착 시 DTPA에 의한 결과와 유사한 현상을

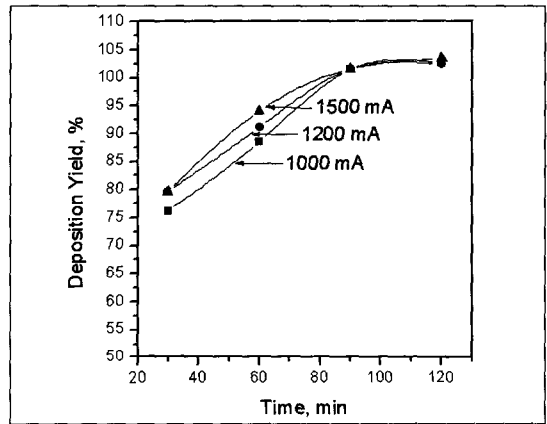


Fig 3. Electrodeposition of ^{237}Np as a function of time and current. ^{237}Np ; 4.16 Bq, deposition condition; same as in Fig 2.

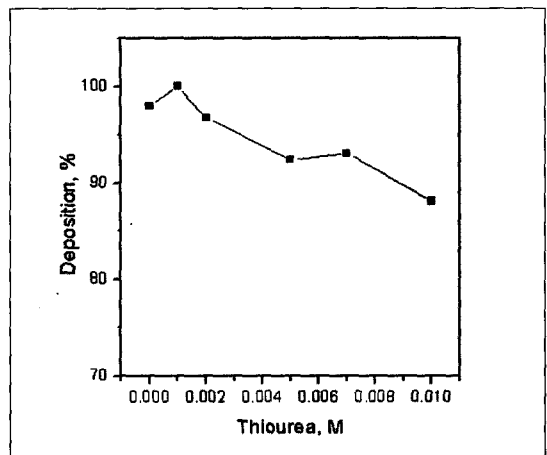


Fig 4. Variation of electrodeposition yield on ^{237}Np according to thiourea concentrations. ^{237}Np ; 4.16 Bq, deposition condition; same as in Fig 2.

[10] 보였으며 그 원인은 규명되지 않았다.

그림 5에는 황산염 전해질에서 ²³⁷Np의 양을 4.16 Bq에서 0.0264 Bq(1ng) 까지 낮추어 감에 따라 전착율을 나타낸 것이다. 그림 5에서 보는 바와 같이 농도가 낮을수록 전착율이 감소하고 재현성도 좋지 않았다. 즉, 4.16 Bq 에서는 99.3%의 전착율과 7.3%의 상대표준편차를, 그리고 1 ng(0.0264 Bq) 에서는 83.3% 전착율과 20.5%의 재현성을 각각 나타내었다. 피크의 분해능(FWHM)은 핵종의 양에 따라 48.7 ~ 1.4 KeV로 나타났으며 이와 같은 결과는 다른 연구자의 결과와 유사하였다[4,12]. 따라서, 본 연구에서 검토한 알파분광법 조건에서 ²³⁷Np 표준물의 경우 0.0264 Bq(1 ng) 까지 계측이 가능한 것으로 판단되었다. 그리고 본 알파계측시스템에서 시료 0.5 ml를 취하여 ²³⁷Np을 정량하는 경우 최소검출가능방사능(MDA)이 0.11 Bq/ml로 나타났다. 이때 MDA는 다음의 계산식을 이용하여 구하였다. 즉, $MDA = MDCR / (F \times V \times Eff.)$, $MDCR = k(Cb/Ts + Cb/Tb)^{1/2}$. 여기서, MDCR은 최소검출계수율, F는 보정계수, V는 취한 시료부피, Eff.는 계측효율, Cb는 바탕값, Ts는 시료측정시간, Tb는 바탕값 측정시간, k는 신뢰구간이다. 따라서, 본 시료분석 조건(0.5 ml)에서 1 ng(0.0264 Bq)은 MDA(0.11 Bq) 이하이기 때문에 측정이 불가능한 것으로 판단된다. 그러나 시료량을 증가하게 되면(2 ml < 1 ng) 까지 측정이 가능할 것으로 생각된다. 즉, 시료를 2 ml 취할 경우 MDA는

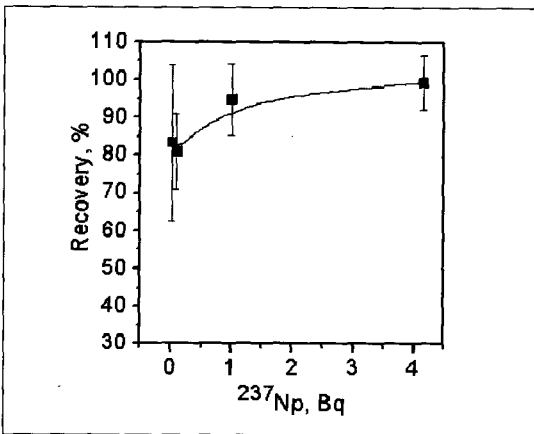


Fig 5. Recovery yields of ²³⁷Np on electrodeposition measured by alpha spectrometry as a variation of the amount of ²³⁷Np

위 식에 의해서 0.027 Bq/ml로 낮아지게 된다.

일반적으로 사용후핵연료 또는 방사성폐기물 시료 중 악티나이드 핵종을 정량하는 것은 분리 및 측정과정이 매우 복잡하기 때문에 특정한 추적자(tracer)를 사용하여 회수율을 구하는 것이 요구된다. ²³⁷Np을 정량하기 위해 사용되는 추적자로는 ²³⁵Np[14], ²³⁶Np[15], ²³⁹Np[8, 9, 16] 및 ²⁴²Pu[17, 18] 등이 있다. ²⁴²Pu를 제외한 이들 Np 핵종들은 반감기가 비교적 짧거나(²³⁵Np; 396.1 d, ²³⁹Np; 2.35 d), 또는 표준물을 구하기가 어려워 현장에 적용하기가 쉽지 않다. 따라서, ²³⁷Np을 정량하기 위해서 Np 추적자 대신에 ²⁴²Pu를 사용하고 있다. 이것은 Pu과 Np이 음이온교환수지에서 용리거동이 서로 유사하기 때문에 가능하다. C. S. Kim 등[17]은 TEVA-Spec 수지에서, 그리고 Q. Chen 등[18]은 AG1-x4 음이온교환수지에서 ²⁴²Pu를 추적자로 사용하여 환경시료 중 ²³⁷Np을 질량분석법으로 정량하였다. 본 연구에서는 알파분광법으로 ²³⁷Np을 정량할 때 ²⁴²Pu를 추적자로 사용하고자 두 핵종의 알파스펙트럼을 측정하고 또한 피크의 분해능 등을 검토하였다. ²⁴²Pu(α 4.901 Mev)와 ²³⁷Np(α 4.79 Mev)은 알파에너지가 인접해($\Delta E=111$ kev) 있기 때문에 두 핵종의 농도를 서로 달리 하여(1 Bq ~ 0.1 Bq) 전착한 후 알파스펙트럼을 분석하였다. 두 핵종의 농도가 모두 높은 경우(²³⁷Np/²⁴²Pu = 1 Bq/1 Bq) 두 피크가 서로 중첩되었으며(FWHM : 27.04 kev/29.47 kev), 두 핵종의 농도가 모두 낮은 경우(²³⁷Np/²⁴²Pu = 0.1 Bq/0.1 Bq)에는 두 피크가 상호 분해되었다(FWHM : 5.54 kev/5.34 Kev). 그러나 이 때에도 피크의 재현성은 낮게 나타났다(RSD; 20.5%). 그리고 두 핵종의 농도차가 큰 경우(²³⁷Np/²⁴²Pu = 1 Bq/0.1 Bq, 또는 0.1 Bq/1 Bq) 낮은 농도의 피크가 큰 피크에 중첩되어 분리되지 않았다. 그 외에도 사용후 핵연료 시료는 환경시료와는 달리 ²³⁹Pu(5.16 MeV)의 양이 ²⁴²Pu 및 ²³⁷Np의 양에 비해 매우 높기 때문에 이들 핵종(²⁴²Pu/²³⁷Np)들의 알파에너지 피크가 ²³⁹Pu 피크에 중첩되어 정량적인 결과를 얻기가 매우 어렵다. 따라서, 알파분광법으로 사용후핵연료 시료 중 ²³⁷Np 정량하기 위해서 ²⁴²Pu를 추적자로 사용하는 것은 적

합하지 않는 것으로 판단되었다.

나. 회수율 측정 및 사용후 핵연료 시료 중 ²³⁷Np 정량

앞에서 언급한 바와 같이 사용후 핵연료 시료 중 ²³⁷Np 를 정량하기 위해서는 적당한 추적자를 사용하여 회수율을 구하는 것이 바람직하나, 본 연구에서는 표 1의 합성용액을 사용하여 외부표준물(²³⁷Np)에 대한 회수율을 구하였다. Np 분리는 기 확립된 음이온 교환 분리방법[8,9]을 사용하였으며, 질산매질의 합성용액 일정량을 취하고 Fe²⁺에 의해 Np을 Np⁴⁺로 조절을 한 다음 음이온교환 분리관[4 mm(id) × 40 mm (h)]에 흡착하였다. 본 분리방법을 이용하여 표준용액의 ²³⁹Pu 와 ²³⁷Np 을 사용하여 각각 분리한 후 그 결과를 그림 6에 나타내었다. 그림 6에서 보는 바와같이 Np과 Pu이 잘 분리되고 있다. 8 M 질산 10 ml로 우라늄 및 핵분열생성물질을 제거한 후 9 M HCl-0.05 M NH₄I 용리액 15 ml 및 0.5 M HCl 용리액 15 ml 로 Pu 및 Np을 각각 용리하였다. 분리된 Np은 황산염 매질에서 전착한 후 알파분광분석법으로 ²³⁷Np 을 정량하였다. 표 3에 합성용액으로부터 구한 회수율을 나타내었으며 평균 98.8%의 회수율을 나타내었다.

합성용액에서와 같은 방법으로 연소도가 40 ~ 60 GWD/MTU 되는 사용후 핵연료 시료 용액 중 ²³⁷Np 을 정량하였다. 시료용액 0.5 ml 를 취한 후 증발 건조하고 다시 질산매질로 변환한 후 위의 음이온교환

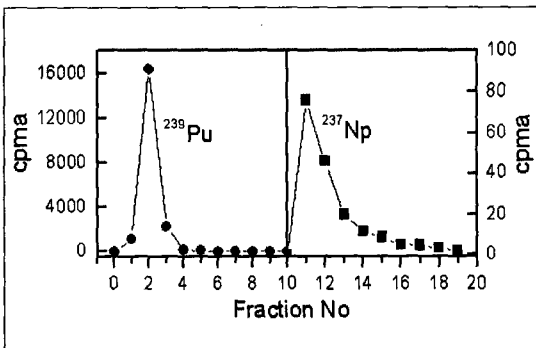


Fig 6. Chromatogram of Pu and Np on the anion exchange column. Column; AGMP-1, 200-400 mesh size, 4 mm(dia) × 28 mm(L). Eluent 9 M HCl-0.05M NH₄I (frac. no 1-10) for Pu, 0.5 M HCl (no 11-20) for Np. Sample ; ²³⁹Pu 600 Bq and ²³⁷Np 8.32 Bq, Flow rate; gravity(0.19~0.3 ml/min), 1 fraction ; 1.5mL, Detection: LSC

수지법으로 Np을 분리하였다. 이 과정에서 ^{239/240}Pu(5.16 MeV)와 ²⁴¹Am(5.48 MeV)이 소량 유입되어 알파스펙트럼 측정 시 ²³⁷Np(4.79 MeV)에 인접하여 피크가 나타났으나 ²³⁷Np 정량에는 간섭영향을 주지 않았다. 그리고 본 시료분석(0.5 ml)에서 알파분광법에 의해 측정된 ²³⁷Np 의 방사능 값은 모두 최소검출가능방사능(MDA) 이상의 값(4 ~ 6 Bq/ml)을 나타내었다. 표 4에 사용후 핵연료 시료 중 ²³⁷Np의 값을 나타내었는데 연소도에 따라 0.527 ~ 0.814 μg ²³⁷Np/mgU의 값을 나타내었으며, 이 결과는 Origen-2 Code[1]에 의한 계산 값과 비교할 때 10% 이내에서 두 값이 서로 일치하였다.

IV. 결론

본 연구는 사용후 핵연료 중 ²³⁷Np의 정량법을 검토한 것인데, 우선 ²³⁷Np 표준물질을 사용하여 전착 과정 및 알파분광분석법을 검토하여 최적 전착조건, 전착율 및 검출한계 등을 확인하였으며 ²³⁷Np 을 1ng 까지 전착한 후 측정이 가능하였다. 사용후 핵연료 중 Np의 분리과정은 기 확립된 질산매질에서 음이온 교환수지법을 사용하였으며, 이 경우 미량의 Pu 및 Am 이 유입되었지만 알파분광법에 의한 ²³⁷Np 정량에는 이들 동위원소가 간섭영향을 주지 않았다.

Table 3. Recovery yield for the determination of ²³⁷Np in synthetic sample solutions

Sample	²³⁷ Np(μg)		Recov.(%)
	added	measured	
SY-1	0.12	0.11855	98.8
SY-2	0.09565	0.0916	95.8
SY-3	0.09565	0.09069	94.8
SY-4	0.09565	0.10143	106.0
Aver. ± 1S			98.8±5.1

* Specific activity: 26.1 Bq/ μg

Table 4. Contents of ²³⁷Np in spent nuclear fuel samples

Sample	²³⁷ Np(μg/mgU)		Diff.(%) (c-m)100/c
	measurement	calculation	
SF-1	0.814	0.881	7.6
SF-2	0.705	0.75	5.9
SF-3	0.527	0.529	0.3

사용후 핵연료 시료 중 ^{237}Np 을 정량한 후 계산 값 (Origen-2)과 비교한 결과 오차범위 내에서 서로 일치하였으나, 본 방법은 ^{239}Np 등 적절한 추적자를 사용하지 않고 ^{237}Np 을 외부표준물로 사용하였기 때문에 이에 따른 일정 정도의 불확실성을 내포하고 있다. 따라서, 향후 이를 보완하고, 또한 보다 많은 시료를 대상으로 하여 신뢰도를 높이므로 본 정량법이 방사성폐기물 처분장의 안전성 평가 및 사용후 핵연료의 선원항 자료생산 등 관련 연구 및 사업에 활용될 수 있도록 하고자 한다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으므로 이에 감사드립니다. 또한 본 연구에서 Np 분리에 관한 많은 조언을 해 주신 한국원자력연구소 서무열 박사님께 감사드립니다.

References

- [1] Croff., A. G., "A Revised and Updated Version of Oakridge Isotope Generation and Depletion Code", ORNL-5621, ORIGEN-2, 1980.
- [2] Mark W. Huntley, "Sequential separation of americium, curium, plutonium, neptunium and uranium in various matrices from the electrometallurgic treatment of spent-nuclear fuel", *Radiochim. Acta*, 89, pp. 605-612(2001).
- [3] P. K. Mohapatra, P. B. Ruikar and V. K. Manchanda, "Separation of neptunium and plutonium from acidic medium using 3-phenyl-4-benzoyl-5-isoxazolone", *Radiochim. Acta*, 90, pp. 323-327(2002).
- [4] S. Bajo, J. Eikenberg, "Electrodeposition of actinides for alpha-spectrometry", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 242(3), pp. 745-751(1999).
- [5] J. M. Barrero Moreno, M. Betti and J. I. Garcia Alonso, "Determination of neptunium and plutonium in the presence of high concentration of uranium by ion chromatography-inductively coupled plasma mass spectrometry", *J. Anal. At. Spectrom.*, 12, pp. 355-361(1997).
- [6] American Society for Testing and Materials, "Standard method for atom percent fission in uranium and plutonium fuel", ASTM E321-98(1996).
- [7] Chang-Heon Lee, Moo-Yul Suh, Kwang-Soon Choi, Jung-Suk Kim, Byong-Chul Song, Kwang-Yong Jee and Won-Ho Kim, "Separation of fission products from spent pressurized water reactor fuels by anion exchange and extraction chromatography for inductively coupled plasma emission spectrometric analysis", *Analytica Chimica Acta*, 428, pp. 133-142(2001).
- [8] F. P. Roberts and F. P. Brauer, "Sequential separation of some actinide elements by anion exchange", HW-60552, 1959.
- [9] S. I. Koyama, M. Oasaka, T. Namekawa, M. Ito, T. Mitsugashira, "Development of analytical method for neptunium and americium in irradiated MOX fuels applying a new isolation technique based on ion exchange and oxidation", *Proceeding of the 4th KAERI-JAERI Joint Seminar on Post Irradiation Technology*, Oct. pp. 16-18(2002), KAERI, Daejeon, Korea.
- [10] Kihsoo Joe, Chang-Heon Lee, Byung-Chul Song, Young-Shin Jeon, Won-Ho Kim and Jeong-Kee Suh, "Electrodeposition of ^{241}Am and ^{244}Cm in spent nuclear fuel samples for alpha-spectrometry", *Bull. Korean Chem. Soc.*, 24(5), pp. 657-660 (2003).
- [11] S. E. Glover, R. H. Filby, S. B. Clark and S. P. Crytdal, "Optimization and characterization of a sulfate based electrodeposition method for alpha-spectroscopy of actinide elements using chemometric analysis", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 234(1), pp. 213-218(1998).
- [12] M. H. Lee and C. W. Lee, "Preparation of

- alpha-emitting nuclides by electrodeposition", Nucl. Instr. and Meth. in Physics Research A, 447, pp. 593- 600(2000).
- [13] K. Boto, "Organic additives zinc electroplating", Electrodeposition and Surface Treatment, 3, pp. 77-95(1975).
- [14] G. Rosner, R.Winkler, and M. Tamamoto, "Simultaneous radiochemical determination of ^{237}Np and ^{239}Np with ^{235}Np as a tracer, and application to environmental samples", J. Radioanal. and Nucl. Chem., 173(2), 273-281(1993).
- [15] Timothy C. Kenna, "Determination of plutonium isotopes and neptunium-237 in environmental samples by inductively coupled plasma mass spectrometry with total sample dissolution", J. Anal. At. Spectrom. 17, 1471-1479(2002).
- [16] Chang-Kyu Kim, A. Yakaku, M. Tamamoto, H. Kawamura, K. Shiraishi, H. Takayama, and N. Ikeda, "Determination of ^{237}Np in environmental samples using inductively coupled plasma mass spectrometry", J. Radioanal. and Nucl. Chem., 132(1), 131-137(1989).
- [17] C. S. Kim, C. K. Kim and K. J. Lee, "Simultaneous analysis of ^{237}Np and Pu isotopes in environmental samples by ICP-SF-MS coupled with automated sequential injection system", J. Anal. At. Spectrom., 19, pp. 743-750(2004).
- [18] QingJiang Chen, H. Dahlgaard, S.P.Nielson, A.Aarkrog, " ^{242}Pu as tracer for simultaneous determination of ^{237}Np and $^{239,240}\text{Pu}$ in environmental samples", J. Radioanal. and Nucl. Chem., 253(3), 451-458(2002).