'95 추계학술 발표회 논문집
한국 원자력 학회

Radio-gas chromatography를 이용한 수소 동위원소 및 헬륨 동위원소의 분리

이 한 수, 강 희 석, 백 승 우, 안 도 희, 김 은 기, 정 홍 석
한국 원자력 연구소

K.Kurosawa, M.Kato, H.Sugai, and M.Tanase
Department of Radioisotope
Japan Atomic Energy Research Institute

요 약

핵융합의 원료로 고려되고 있는 삼중수소는 $^{6}Li(n,\alpha)T$의 반응을 이용하여 얻을 수 있는데 이때 이 반응의 정보를 보다 많이 알기 위해서는 삼중수소의 분리는 물론 헬륨의 분리도 필요하다. 이를 위해서 $MnCl_2$로 코팅된 알루미나 컬럼을 이용한 방사선 가스크로마토 그래피의 방법을 이용하였다. 기존의 알루미나 컬럼으로는 수소 동위원소들의 분리가 가능하였는데 헬륨동위원소의 경우 컬럼내에서 같은 체류시간때문에 분리가 어렵다. 이를 위해서 두개의 다른 캐리어 가스를 사용함으로서 이를 분리 하였다. 본 연구는 두개의 다른 캐리어 가스를 사용하여 수소 동위원소의 분리는 물론 헬륨 동위원소를 분리하였다. 헬륨동위원소의 분리중 두 원소가 서로 Azeotrophy의 성질을 갖는다는 것을 발견하였으며 따라서 헬륨 동위원소의 분리를 위해서는 반드시 서로 다른 두개의 캐리어 가스를 사용해야만이 가능하다는 것을 밝혔다.

1. 서론

수소 동위원소는 수소, 중수소, 삼중수소로 되어있으며 이들의 물리적 성질은 매우 비슷하다. 수소 동위원소중 특히 삼중수소는 방사성 물질로 인체에 유해하므로 가압 중수로의 경우 중수소로부터의 분리가 필요하다. 이 경우 고려대상의 기상의 성분은 H_2, HD, HT, D_2, DT, T_2의 6성분이

된다. 한편 삼중수소는 핵융합의 원료로 사용되는데 이 경우는 Li의 중성자 조사반응($^6Li(n,\alpha)T$)에 의해 얻어진다. 실제적으로는 Li 합금의 불순물 때문에 수소도 발생하며 삼중수소의 붕괴에 의해서 ^3He이 생성된다. 조사반응의 다른 생성물인 ^4He까지 합치면 수소 동위 원소 2개, 헬륨 동위원소 2개의 4가지 성분이 된다. 따라서 중수소와 삼중수소의 핵융합 반응의 경우 고려되어야 할 성분은 H_2, HD, HT, D_2, DT, T_2, ^3He, ^4He의 8성분이 된다. 이들 전부 핵융합 반응에 관여하는 것은 아니고 핵융합 원료가 제조되는 과정에서 정제되는데 이때 분석하고 분리되어야 하는 성분이라고 할 수 있다. 이 8가지 성분 중 수소동위원소들은 초저온에서 방사선 가스크로마토그래피 방법에 의하여 이미 분리되었다[1,2]. 그러나 헬륨동위원소의 경우 흡착제로 사용되는 알루미나에서의 retention time이 서로 같기 때문에 이들은 분리되지 않는다. 본 연구는 이 경우 다른 캐리어 가스 즉 네온과 ^4He을 캐리어 가스로 사용함으로서 혼합물중에 각각의 성분을 분리, 정량 할 수 있었다.

2. 분리 실험

수소동위원소 및 헬륨동위원소의 분리를 위해 가스크로마토그래피의 캐리어 가스는 Ne(99.99% 순도)이나 ^4He(99.999% 순도)으로 바꾸어 사용하였다. 전체 시스템은 스테인레스 스티일로 되어 있고 진공도 10^{-5} torr를 유지할 수 있도록 설계되었으며 이를 위해서 이음새 부분들은 용접으로 마무리 되었다. 가스크로마토그래피는 Shimazu사의 것을 사용하였다. 컬럼은 10%의 $MnCl_2$가 코팅된 Al_2O_3를 사용하였으며 컬럼을 액체 질소병에 넣어 온도를 액체질소의 온도로 유지하였다. TCD의 온도는 100 C, Current는 80 mA, 캐리어 가스의 유량은 50 ml/min.으로 조절하였다.

그림 1은 실제 삼중수소 제조장치인 TREX2의 개략도를 나타낸 것이다. 삼중수소는 Vacuum Furnace에서 타겟을 가열함으로서 발생되는데 이때 타겟내의 불순물의 영향으로 수소등도 같이 생성된다. 생성된 삼중수소는 우라늄 게터내에 저장된다. 전체의 시스템은 따로 삼중수소 제거장치에 연결되어 있어 각 라인에서 삼중수소 누출이 있을 경우 즉시 제거되도록 설계되어 있다. 삼중수소 제조장치에서 발생된 삼중수소는 샘플러를 통과하며 이는 다시 가스크로마토 그라피에 연결된다. 가스크로마토 그라피의 TCD부분을 지나기 전에 먼저 Ionization Chamber를 통과해 방사선량이 측정된다.

3. 실험 및 결과

수소 동위원소의 분리를 위해서는 일반적으로 네온을 캐리어 가스로 사용한다. 본 연구에서도 수

소 동위원소의 분리를 위해서는 먼저 네온을 캐리어 가스로 사용하였다. 헬륨 동위원소의 분리에서 네온으로 캐리어 가스를 사용한 경우 각각 TCD의 응답크기가 달라진다. 이는 TCD 응답의 크기가 샘플들의 질량과 관계가 있기 때문이며 헬륨동위원소의 Calibration 관계를 실험으로 구한 결과 관계식은 다음과 같다.

$$\log A(^4He) = 6.01 + 0.994 \log V(^4He) \text{ with Ne Carrier } \ldots (1)$$

$$\log A(^3He) = 6.09 + 0.956 \log V(^3He) \text{ with Ne Carrier } \ldots (2)$$

$$\log A(^3He) = 4.41 + 0.970 \log V(^3He) \text{ with } ^4He \text{ Carrier } \ldots (3)$$

만일 ^3He과 ^4He의 혼합물의 Ne 캐리어 가스를 사용한 TCD의 응답이 혼합된 양과 선형응답으로 나타내 진다면 식 (1)과 (2)의 합은 총 헬륨의 응답을 나타내므로 헬륨 혼합물의 양을 추정할 수 있다. 그러나 헬륨 동위원소의 혼합물중 ^3He의 양을 0%, 28.8%, 48.7%, 74.7%, 100%로 변화시켜가면서 TCD응답을 측정한 결과 헬륨의 동위원소의 성분비의 증가와 TCD응답과는 선형관계에 있지 않다는 것이 발견되었다. 이는 ^3He과 ^4He의 혼합물이 액체질소 온도에서 알루미나의 흡착상의 Azeotrophy의 성질을 가지고 있기 때문으로 생각된다. 따라서 헬륨 동위원소의 혼합물에서 ^3He의 양을 측정하기 위해서는 반드시 식 (3)의 관계를 이용하여 먼저 ^3He의 양을 측정한 다음 이것을 혼합물 총량에서 제거하여 ^4He의 양을 측정하는 것이 정확한 방법이라 할 수 있다. 즉 샘플의 부피 및 압력으로부터 전체 혼합물의 양을 계산하고, ^4He 캐리어 가스를 사용하여 ^3He의 양을 측정한 후에 이를 전체량에서 제함으로서 마지막으로 ^4He의 양을 구할 수 있다.

그림 2는 삼중수소 제조장치로부터 발생한 샘플을 가스크로마토그라피 및 Ionization Chamber를 이용하여 분리한 결과이다. 그림 2의 하단부분은 Ionization Chamber의 응답으로 이를 이용하여 삼중수소와 관련된 모든 성분 즉 HT, DT, T_2의 양을 분석할 수 있었다. 다음으로 수소 및 중수소와 관련된 성분 즉 H_2, HD, D_2의 양을 각각 Ne캐리어 가스를 통한 실험으로 Calibration 커브에 의해 측정할 수 있었으며 마지막으로 전체의 양을 알고 ^4He의 캐리어 가스를 사용한 후 ^3He의 양을 추정하여 ^4He의 양을 계산하였다. 계산한 결과는 실제 샘플과 비교한 결과 5%의 에러범위내에 측정됨으로서 수소 동위원소 및 헬륨 동위원소를 분리하고 각각의 양을 측정할 수 있었다.

3. 결론

핵융합을 위한 삼중수소는 $^{6}Li(n,\alpha)T$의 반응에 의해 제조되는데 이때 제조과정에서 여러가지 성분의 혼합물이 생성된다. 이는 주로 수소와 헬륨의 동위원소로 이루어져 있으므로 생성물의 성분분석을 위해서는 수소 및 헬륨 동위원소의 분리가 필요하다. 본 연구는 수소동위원소 및 헬륨 동위원소의 분리를 위하여 Ionization Chamber 및 가스크로마토그래피를 이용하였다. 이중 수소동위원소는 알루미나 컬럼을 이용하여 액체질소의 온도에서 분리가 가능하지만 헬륨 동위원소의 경우 같은 Retention Time으로 말미암아 분리가 어렵다. 헬륨 혼합물의 분리를 위해서 ^{4}He을 캐리어 가스로 사용하여 ^{3}He의 양을 측정하고 이로부터 ^{4}He의 양을 측정할 수 있었다. Ne의 캐리어 가스를 사용한 경우 헬륨 동위원소들은 Azeotrophy를 이루는 것으로 관찰되었으며 따라서 혼합물이 선형관계를 이루지 않아 Ne으로 캐리어 가스를 사용한 경우는 헬륨 동위원소 각각의 양을 추정하는 것이 적절치 않다. 수소동위원소와 헬륨동위원소의 혼합물에 대하여 정성 및 정량분석을 행한 결과 측정치가 실제치와 잘 일치함을 보였다.

참 고 문 헌

1. M. Tanase and K. Kato, "Enrichment of Tritium by Combined Gas-chromatography - Isotopic Decompositoin Process," Int. J. Appl. Radiat. Isot., 34(4), 687(1983)

2. M. Tanase, M.KAto, K.Kurosawa, S.Motoishi, S.Okane, H.Sugai, M.Fuji, K.Onoma, and H.Yamabayashi, "Production of 40TBq Tritium Using Neutron-Irradiated ^{6}Li-Al Alloy," J. Nuclear Science and Technology, 25(2), 198(1988)

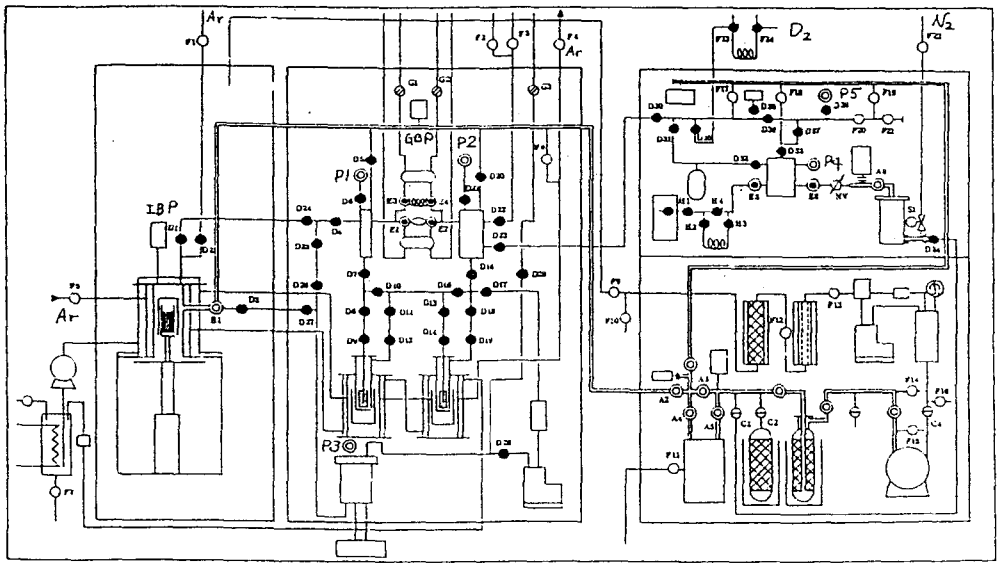

Fig. 1. Schematic View of TREX2

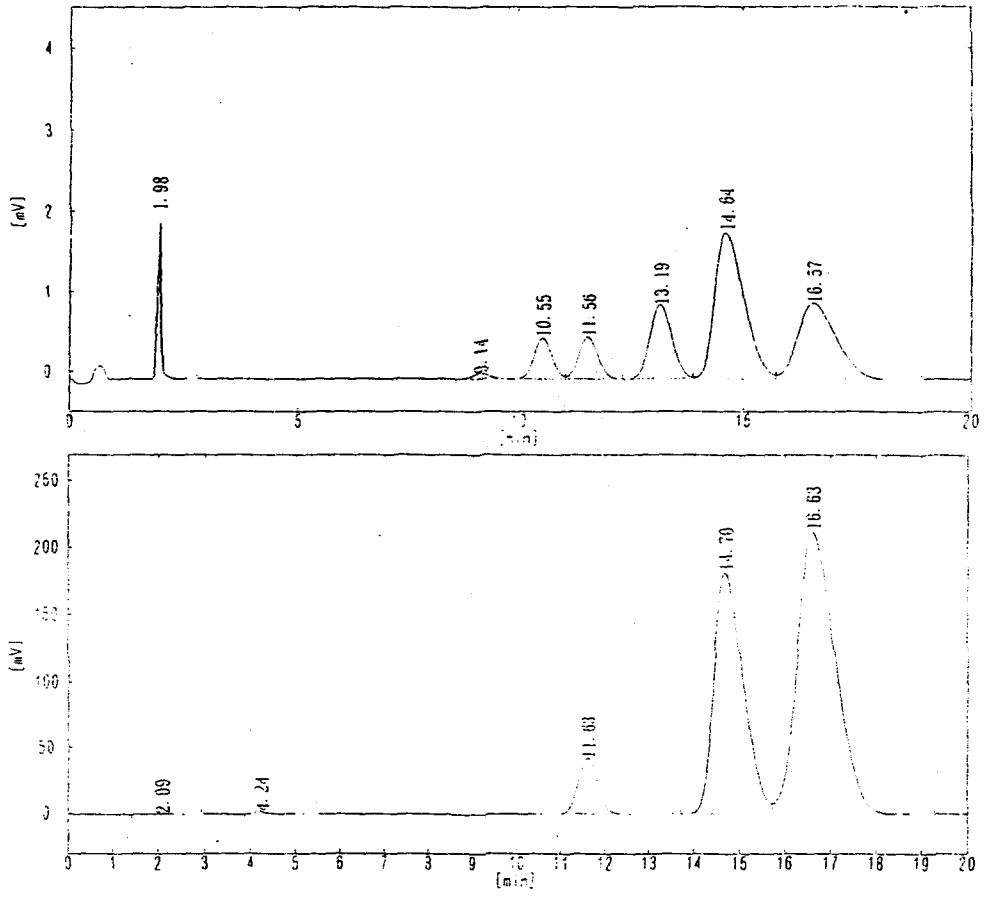

Fig. 2. Typical TCD and IC Responses of Helium and Hydrogen Isotopes.