

알파분광법에 의한 방사성폐기물 시료 중 ^{241}Am , ^{244}Cm , ^{242}Cm 및 ^{238}Pu 의 정량

조기수, 김태현*, 전영신, 박영재, 지광용, 김원호

한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

* 주식회사 액트, 대전광역시 대덕구 신일동 1688-5번지

원자력 발전소 및 방사성물질 취급시설에서 발생하는 각종 폐기물에 대한 핵종분포 및 그 농도를 구하는 것은 방사성 폐기물사업을 수행하는데 중요한 요소가 된다. 특히 알파 및 베타선 방출 핵종에 대해서는 화학적 방법으로 시료를 전처리한 후 각 핵종을 분리하여 정량하고 있으며, 이 경우 많은 시간과 비용이 소요된다. 따라서, 일정한 대표시료를 선정하고 이로부터 핵종분석을 수행하여 척도인자를 구하는 기초자료를 확보하는 연구가 필요하다. 본 연구에서는 다양한 방사성폐기물 시료 중 비교적 균일성이 낮은 잡고체 시료에 대해 초우란 원소(TRU; ^{241}Am , ^{244}Cm , ^{242}Cm 및 ^{238}Pu)를 정량하고자 하였다.

종이류, 면류 및 비닐류의 잡고체 시료를 회화하여 혼산처리($\text{HNO}_3\text{-HCl-HF}$)로 용액화한 다음 음이온 교환분리관에서 HI 용리액으로 Pu를 분리하고, 다시 HDEHP 추출크로마토그래피에서 DTPA-Lactic Acid 용리액으로 Am과 Cm을 각각 분리하였다. 분리된 이들 원소는 황산염 매질에서 전착한 후 알파분광분석법으로 각 핵종을 정량하였다. Pu 동위원소 정량은 일반적으로 질량분석법을 이용하여 ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu 및 ^{242}Pu 를 각각 정량하지만, 이때 ^{238}Pu 의 경우는 분리과정에서 우라늄 환경으로부터 ^{238}U 이 오염될 가능성이 매우 높기 때문에, 본 연구에서는 분리된 Pu 원소를 전착한 후 알파분광법으로 ^{238}Pu 의 에너지(5.5MeV)를 측정하여 정량하고자 하였다. 본 연구에서는 ^{242}Pu 및 ^{243}Am 을 각각 추적자(carrier)로 사용하여 Pu 및 Am/Cm 정량에 대한 회수율을 구하였다. 특히 ^{242}Pu 는 시료 중에 존재하므로 추적자로 사용하는 것이 제한적이지만, 시료 중에 존재하는 ^{242}Pu 의 양이 상대적으로 매우 낮기 때문에 무시할 수 있다.

잡고체 시료 중 TRU를 분리하기 위해 산화수 조절 등 매질변환을 하는 과정에서 일부 금속성분 이온이 완전히 용해되지 않고 침전물을 형성하였다. 이들 침전물은 TRU 분리과정에 방해가 되기 때문에 여과 또는 기타 방법으로 침전물을 제거하는 방법을 검토하였다. 전처리과정에서 생성된 침전물의 성분을 확인한 결과 주성분이 Ca, Si, Mg, Zn 및 Al인 것으로 나타났다. 그리고 침전물의 생성 정도는 종이류, 비닐류, 면류 순으로 증가되었으며, 용액중의 이들 원소들이 12M HCl 매질에서 완전히 용해되지 않고 일부 침전물이 생성되는 것은 혼산 매질에서 보다 12M HCl 매질에서 용해도가 더 낮기 때문으로 생각된다. 즉, 침전물이 생성되는 것은 Si의 경우는 불용성 물질(SiO_2)이 생성되고, 그 외 원소들의 경우는 낮은 용액도에 의한 것으로 판단된다.

잡고체 시료에 추적자(carrier)를 가하여 회수율을 구한 결과, 침전물 제거방법에 따라 회수율이 다르게 나타났다. 즉, Pu의 경우 membrane syringe filter(0.45 μm)를 사용했을 때(10 ~ 80%)가 상등액 만 취했거나(2.6 ~ 56%) filter paper를 사용했을 때(~5%) 보다 높은 회수율을 보였지만 회수율의 편차가 매우 크게 나타났다. 이것은 잡고체 시료의 경우 시료유형이 매우 다르고, 균질성이 낮기 때문으로 생각되며, 또한 침전물 여과 시 syringe filter의 pore size가 크기 때문에 침전물이 완전히 제거되지 않기 때문으로 판단된다. 지금까지 검토한 분리방법을 적용하여 원전 발생 방사성폐기물(잡고체) 시료 중 TRU를 정량하였다. 그림 1과 2에는 시료 중의 ^{238}Pu 및 ^{241}Am , ^{244}Cm , ^{242}Cm , 그리고 추적자로 사용된 ^{242}Pu 및 ^{243}Am 의 스펙트럼을 각각 나타내었다. 표 1에는 원전발생 잡고체 시료 중 이들 핵종의 함량을 나타내었는데, 잡고체 종류에 따라 ^{238}Pu 은 0.01 ~ 0.6 Bq/g, ^{241}Am 은 0.04 ~ 0.34 Bq/g, ^{244}Cm 은 0.13 ~ 0.66 Bq/g, 그리고 ^{242}Cm 은 <0.02 Bq/g의 방사능 값을 각각 나타내었다. 즉, 잡고체 종류에 따라 TRU의 농도분포가 매우 크게 나타났다.

Table 1. Amounts of TRU determined in radwaste samples collected from nuclear power reactors

Sample	^{241}Am		^{244}Cm		^{242}Cm		^{238}Pu	
	Bq/g	Unc.	Bq/g	Unc.	Bq/g	Unc.	Bq/g	Unc.
DAW-V-1	0.106	0.030	0.664	0.187	0.005	0.001	0.058	0.005
DAW-V-2	0.170	0.048	0.719	0.203	0.006	0.002	0.105	0.010
DAW-V-3	0.111	0.031	0.524	0.148	0.017	0.005	0.177	0.017
DAW-P-1	0.043	0.012	0.274	0.077	0.026	0.007	0.593	0.056
DAW-P-2	0.040	0.011	0.554	0.156	0.027	0.007	0.009	0.001
DAW-P-3	0.068	0.019	0.337	0.095	0.012	0.003	0.011	0.001
DAW-C-1	0.313	0.088	0.197	0.055	ND	ND	0.079	0.007
DAW-C-2	0.198	0.056	0.134	0.038	0.005	0.002	0.062	0.006
DAW-C-3	0.342	0.097	0.253	0.071	ND	ND	0.096	0.009

* DAW-V, -P, -C : 잡고체 비닐류, 종이류, 면류

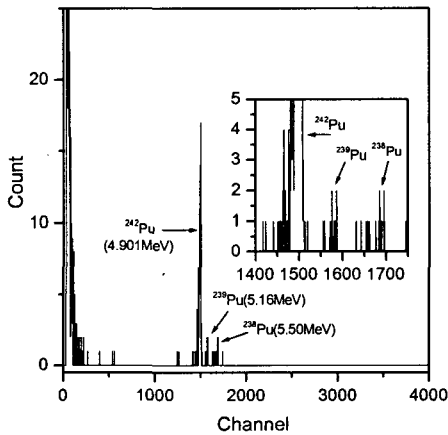


Fig 1. Alpha Spectrum of Pu Nuclides Electro-deposited after Separation in Radwaste Sample, ^{242}Pu (Spike): 0.3858 Bq, Sample: YK4-DAW-P1, Counting Time: 5000sec, Counting Effi. : 22.2%

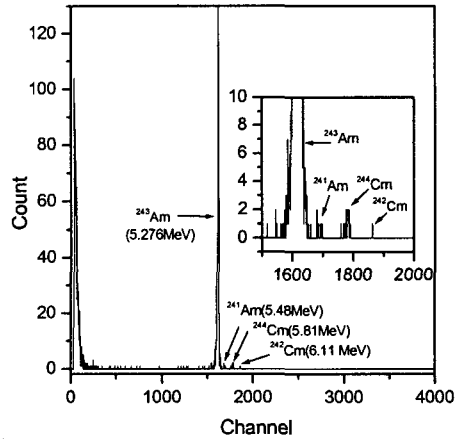


Fig 2. Alpha Spectrum of Am Nuclides Electro-deposited after Separation in Radwaste Sample, ^{243}Am (Carrier): 4.13 Bq, Sample: YK4-DAW-P1, Counting Time: 5000sec, Counting Effi. : 22.2%